
Entwicklung und Charakterisierung einer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle für zeitaufgelöste Röntgenbeugung im Pikosekundenbereich

Julian A. Schauseil



München 2015

**Entwicklung und Charakterisierung einer
lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle für
zeitaufgelöste Röntgenbeugung im
Pikosekundenbereich**

Julian A. Schauseil

Dissertation

der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Julian Alexander Schauseil
aus München.

München, 29. Januar 2015

Erstgutachter: Prof. Dr. Wolfgang Zinth

Zweitgutachter: PD Dr. Markus Braun

Datum der mündlichen Prüfung: 11. März 2015

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	vii
1 Einleitung	1
2 Theorie lasergetriebener Plasma-Röntgenquellen	3
2.1 Laser-Materie-Wechselwirkung bei moderaten bis hohen Intensitäten . .	4
2.2 Erzeugung von Röntgenstrahlung durch laserbeschleunigte Elektronen .	18
3 Aufbau und Methoden	29
3.1 Lasersystem	29
3.2 Erzeugung ultrakurzer Röntgenimpulse	33
3.3 Methoden zur Charakterisierung ultrakurzer Röntgenimpulse	41
4 Optimierung und Charakterisierung	51
4.1 Variation der Polarisierung des Laserlichts	51
4.2 Einfluss des Einfallswinkels des Laserlichts auf die Röntgenerzeugung .	52
4.3 Optimierung der Laserlichtintensität auf dem Kupferband	54
4.4 Einfluss des Debris-Schutz auf die Röntgenerzeugung	58
4.5 Stabilität der Führung des Kupferbands	62
4.6 Spektrum der Röntgenstrahlung	64
4.7 Bestimmung der Größe der Röntgenquelle	65
4.8 Zusammenfassung der Parameter der optimierten Röntgenquelle	68
5 Transiente Röntgenbeugung	71
5.1 Grundlagen der transienten Röntgenbeugung	71
5.2 Aufbau-erweiterung zu einem Anrege-Abtast-Experiment	72
5.3 Bestimmung des zeitlichen Nullpunkts	78
5.4 Referenzierung	81
5.5 Signalaufbereitung	84
5.6 Messungen an 4-(Diisopropylamino)benzonitril	86
5.7 Messungen an Gallium-Arsenid	91
6 Zusammenfassung	103
A Anhang	107
A.1 Steuerung des Bandlaufwerks	107

Abbildungsverzeichnis	111
Tabellenverzeichnis	115
Literatur	117

Kurzfassung

Transiente Strukturen spielen eine Schlüsselrolle für das Verständnis molekularer Reaktionen. Lasergetriebene Plasma-Röntgenquellen bieten die Möglichkeit, die Dynamik solcher Strukturen mit einer Zeitauflösung im Sub-Pikosekundenbereich durch Anlagen im Maßstab eines normalen Universität-Laserlabors zu verfolgen. In dieser Arbeit wird Aufbau, Charakterisierung und Optimierung einer solchen Röntgenquelle mit einer Photonenenergie von 8,0 keV, ihre Integration in einen Anrege-Abtast-Aufbau und erste Experimente beschrieben.

Die Anlage wurde speziell für Experimente an molekularen Kristallen entworfen, die eine möglichst hohe Anzahl an Röntgenphotonen pro Impuls erfordern und für einen unterbrechungsfreien Betrieb von bis zu acht Stunden bei 10 Hz ausgelegt. Polarisierung, Einfallswinkel, Chirp und Bündeldurchmesser der Laserimpulse, welche die Röntgenstrahlung erzeugen, wurden optimiert. So können bis zu $3 \cdot 10^{10}$ Röntgenphotonen pro Sterad und Laserimpuls mit einem Rauschen der Anzahl der Röntgenphotonen von ca. 5 % produziert werden. Dazu wurde auch eine neue Methode entwickelt, um die Optiken der Röntgenerzeugung vor Debris zu schützen. Für die Dauer der Röntgenimpulse lässt sich aus den Anrege-Abtast-Experimenten eine Obergrenze von wenigen Pikosekunden festlegen.

Für die Anrege-Abtast-Experimente mit Anregung im sichtbaren Spektralbereich und Abtastung im harten Röntgenbereich wurde ein Referenzierungsverfahren entwickelt, das bei einer Messzeit von etwa zehn Minuten pro Datenpunkt das Rauschen auf weniger als 0,2 % reduziert. Es basiert auf hoch-orientiertem pyrolytischen Graphit (HOPG) als Referenzprobe. Eine Bestimmung des zeitlichen Nullpunkts dieser Experimente konnte mit transientser Röntgenbeugung an Gallium-Arsenid für verschiedene Anregungswellenlängen im sichtbaren Spektralbereich erreicht werden.

Erste Testmessungen an 4-(Diisopropylamino)benzonitril (DIABN) haben die Eignung der Anlage für Messungen an Molekülkristallen bewiesen, zeigen aber auch, dass die Photostabilität der Proben noch die Anwendbarkeit begrenzt. In einem weiteren Experiment wurde das Verhalten von Gallium-Arsenid nach optischer Anregung untersucht. Dabei wurde durch einen ultrakurzen Laserimpuls mit 800 nm Wellenlänge eine Schockwelle induziert, die lokal das Gitter des Halbleiters verändert. Mittels transientser Röntgenbeugungsexperimente konnten Aufbau und Bewegung dieser Schockwelle über einen großen Zeitbereich von 3 ns mit einer Auflösung im Pikosekundenbereich verfolgt werden. Für den Aufbau der Schockwelle konnte eine charakteristische Zeitkonstante von 47 ps gefunden werden. Die Bewegung der Schockwelle ins Innere des Halbleiters aus dem durch Röntgenbeugung erfassten Volumen erfolgte mit einer Zeitkonstante von 0,61 ns in guter Übereinstimmung mit theoretischen Abschätzungen. Bei einer Anregungswellenlänge von 400 nm wurde der Anstieg beschleunigt, während die Abklingzeitkonstante unverändert blieb.

1 Einleitung

Struktur ist ein entscheidender Faktor in der Molekülchemie. Sie bestimmt sowohl intramolekulare Reaktionen als auch die Wechselwirkung der Moleküle mit ihrer Umgebung. Historisch gelang es erstmals Max von Laue durch Röntgenstrahlung direkte Informationen über Strukturen auf atomarer Ebene zu erlangen. Die Röntgenstrukturaufklärung half seitdem maßgeblich, den Aufbau von Materie auf der molekularen Ebene im Detail zu verstehen. Prominente Beispiel hierfür sind Strukturaufklärungen biologischer Makromoleküle von der Entdeckung der Doppel-Helix-Struktur der DNS durch Watson und Crick [WC53], aufbauend auf Experimenten von Rosalind Franklin im Jahr 1953, bis zur Struktur der Proteinsynthese.

In den letzten Jahrzehnten wurde dieses Wissen in den Bereich transientser Strukturen ausgedehnt, die als Zwischenprodukt von Reaktionen nur eine sehr beschränkte Lebensdauer haben. Dies geschah vor allem mittels Experimenten an Synchrotrons, die kurze Röntgenimpulse bis hinab zu einer Dauer im Bereich von Pikosekunden erzeugen können. Durch sogenanntes *Laser-Slicing* sind hierbei sogar Impulsdauern bis hinab zu 100 fs erreichbar [ZZ96, Sch00]. Der nächste Schritt in dieser Entwicklung zu immer kürzeren und immer brillanteren Röntgenimpulsen war die Entwicklung von Freien Elektronen Lasern im harten Röntgenbereich (XFELs) im letzten Jahrzehnt [Emm10, MR11]. Sie liefern Impulse von wenigen Femtosekunden Dauer mit bis dahin unerreichbarer Brillanz. Durch diese technischen Fortschritte in Kombination mit der oben erwähnten grundlegenden Relevanz von Strukturodynamik auf molekularer Ebene gewinnt der Bereich der transienten Röntgenstrukturaufklärung zunehmend an Bedeutung [SWC12]. Diese Entwicklung wird derzeit vor allem durch die stark begrenzte Verfügbarkeit der XFELs und der Synchrotrons limitiert, da es sich bei diesen um technisch und finanziell höchstaufwendige Großforschungsanlagen handelt.

An dieser Stelle setzten Experimente mit lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen [MKF91] an. Diese Röntgenquellen erreichen Impulsdauern von 100 fs und sind zudem auf dem Maßstab normaler Universitätslabore betreibbar. Somit bieten sie die Möglichkeit, auch langwierige Testreihen an komplexen Proben zu messen oder Voruntersuchungen durchzuführen, um anschließend Messzeit an XFELs oder Synchrotrons optimal nutzen zu können.

Im Rahmen der hier beschriebenen Arbeit sollte eine lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle entwickelt werden, die sich speziell für die Untersuchung von organischen Moleküle in Anrege-Abtast-Experimenten eignet. Bei diesen Experimenten wird durch einen ultrakurzen Laserimpuls eine Reaktion in einer Probe ausgelöst. In genau definiertem Zeitabstand wird dann mit einem Röntgenimpuls die dadurch in der Probe

induzierte Veränderung detektiert. Durch Variieren des Zeitabstands kann so der Verlauf der Reaktion über einen großen Zeitbereich erfasst werden. Der limitierende Faktor bei solchen Messungen mit einer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle ist die Photostabilität der Moleküle. Nach einer gewissen Anzahl an Anregungsvorgängen degradieren die Proben. Das Experiment ist daher darauf ausgelegt, pro Anregung ein möglichst starkes Signal erfassen zu können, wozu die Röntgenquelle möglichst viele Röntgenphotonen pro Impuls erzeugen muss. Dafür sind ultrakurze, hochenergetische Laserimpulse notwendig, die fokussiert Intensitäten von mehreren Petawatt pro Quadratzentimeter erreichen. Dies stellt hohe Ansprüche an den experimentellen Betrieb.

Die Optimierung und Charakterisierung einer entsprechenden lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle stellt daher einen zentralen Teil dieser Arbeit dar. Dafür werden in Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen zusammengefasst. In Kapitel 3 wird dann der Aufbau der Röntgenquelle und verschiedene Methoden zu ihrer Charakterisierung vorgestellt. Kapitel 4 befasst sich schließlich mit der eigentlichen Charakterisierung und der Optimierung.

In Kapitel 5 werden die ersten mit dieser Anlage durchgeführten Anrege-Abtast-Experimente vorgestellt. Ein Testexperiment befasst sich aufbauend auf den Arbeiten von Braun et al. [Bra07, Bra09] mit DIABN-Kristallen¹. Ein weiteres Experiment schließt an eine der Pionierarbeiten im Bereich der zeitaufgelösten Strukturaufklärung im Pikosekunden-Bereich an, bei der Rose-Petruck et al. [Ros99] mit einer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle die Gitterdynamik von Gallium-Arsenid vermessen konnten.

¹4-(Diisopropylamino)benzonitril

2 Theorie lasergetriebener Plasma-Röntgenquellen

Lasergetriebene Plasma-Röntgenquellen sind in der Lage, ultrakurze Röntgenimpulse mit einer Dauer bis hinab zu 0,1 ps zu erzeugen. Dazu werden intensive, ultrakurze Laserimpulse auf ein Zielmaterial fokussiert. Jeder Impuls erzeugt dort ab einer gewissen Intensität ein Plasma. Das geschieht bereits weit vor dem Maximum der Intensität. Die Elektronen dieses Plasmas werden während des weiteren Verlaufs des Impulses durch dessen elektromagnetisches Feld beschleunigt. Sie treffen auf das verbleibende Zielmaterial und erzeugen dort – analog zur Röntgenröhre – Bremsstrahlung und charakteristische Strahlung.

Als Zielmaterial dient dafür oft Kupfer¹, Titan² oder andere Metalle³, aber auch Wasser [Ful07] und wässrige Lösungen aus alkalischen Salzen [HMF02]. Festkörper kommen als Drähte [Sok03], Folien⁴, massive Blöcke oder Scheiben⁵ zum Einsatz. Flüssigkeiten werden in Hochdruckstrahlen, sogenannten Jets, eingesetzt [HMF02, Ful07]. Auch flüssige Metalle können auf diese Weise genutzt werden [MKF91, Kor02, Zha05, Rei07]. Das Zielmaterial befindet sich bis auf eine Ausnahme bei allen eben genannten Röntgenquellen im Vakuum, um zu vermeiden, dass der fokussierte Laserimpuls bereits in der Luft ein Plasma erzeugt, das ihn dann absorbiert oder reflektiert. Nur in der in Hou08 beschriebenen Röntgenquelle wird das Zielmaterial von einem Heliumjet umflossen, anstatt sich im Vakuum zu befinden. Die Impulse der Lasersysteme in den eben zitierten Veröffentlichungen haben fokussiert Intensitäten von 10^{16} W/cm² bis 10^{19} W/cm² bei Impulslängen von einigen zehn bis einigen hundert Femtosekunden.

Für eine genaue Betrachtung der Vorgänge bei der Erzeugung harter charakteristischer Röntgenstrahlung in Kupfer ist es sinnvoll, diese in mehrere Schritte zu separieren [Sal02]:

1. Erzeugung schneller Elektronen
2. Bewegung, Streuung und Abbremsen der Elektronen im Zielmaterial
3. Effizienz der Erzeugung von charakteristischer Röntgenstrahlung durch die Elektronen

¹Ede00, Zha05, Che08, Hou08, Lu09, Neu10, Kha12.

²ESS02, Sok03, Che04, Ril05, Lu09, Cri13.

³MKF91, Kor02, Hou04, Zha04, Agr06, Hou08, Che08.

⁴Kha12, Lu09, Che08, Zha05, Ril05, ESS02, Kha12.

⁵Ede00, Che08, Hou04, Agr06, Hou08.

Die Punkte 2 und 3 sind relativ gut verstanden, Punkt 1 beinhaltet dagegen die sehr komplexe Wechselwirkung zwischen dem Laserimpuls und dem von ihm erzeugten Plasma, die nicht trivial von beinahe allen Zielmaterial- und Laserparametern abhängt [WK97, Dav09], welche für eine gegebene lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle oft nur zum Teil bekannt sind. Im Folgenden befasst sich Abschnitt 2.1 mit der Absorption der Laserstrahlung und dem Erzeugen schneller Elektronen (Punkt 1) und Abschnitt 2.2 mit deren Wechselwirkung mit dem Zielmaterial und der Erzeugung charakteristischer Strahlung (Punkte 2 und 3).

2.1 Laser-Materie-Wechselwirkung bei moderaten bis hohen Intensitäten

Dieser Abschnitt behandelt die Wechselwirkung von elektromagnetischen Wellen mit Plasmen. Zuerst wird auf das Zwei-Flüssigkeiten-Modell für Plasmen eingegangen. Es beschreibt, wie sich elektromagnetische Wellen in Plasmen fortbewegen. Anschließend werden verschiedene Modelle vorgestellt, welche die Absorption von elektromagnetischen Wellen in Plasmen bei moderaten bis hohen normierten Laserintensitäten (Definition auf Seite 7) von etwa $10^{12} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ bis $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ beschreiben. Die normierte Intensität entspricht in den verwendeten Einheiten bei einer Laserwellenlänge von 800 nm etwa zwei Dritteln gemessenen Intensität in W/cm^2 .

Die Ausführungen dieses Abschnitts folgen im Wesentlichen den Lehrbüchern von Mulser und Bauer [MB10] und Kruer [Kru88] und einer Übersichtsarbeit von Wilks und Kruer [WK97]. Alle Formeln sind im cgs-Einheitensystem angegeben.

2.1.1 Elektromagnetische Wellen in Plasmen⁶

Ein Plasma kann als eine Flüssigkeit aus zwei Komponenten beschrieben werden, den Elektronen und den Ionen. Dazu führt man zunächst eine Phasenraumverteilungsfunktion $\Phi_j(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t)$ ein, welche die Anzahl der Teilchen der Sorte j mit Geschwindigkeit \mathbf{v} am Ort \mathbf{x} zur Zeit t angibt. Nimmt man darüber hinaus an, dass die Teilchen weder rekombinieren noch weiter ionisiert werden, führt die Kontinuitätsgleichung für Φ_j

⁶Gemäß Kru88.

zusammen mit den Bewegungsgleichungen für geladene Teilchen auf die sogenannte *Vlasov-Gleichung*:

$$\frac{\partial \Phi_j}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial \Phi_j}{\partial \mathbf{x}} + \frac{q_j}{m_j} \left(\mathbf{E} + \frac{\mathbf{v} \times \mathbf{B}}{c} \right) \cdot \frac{\partial \Phi_j}{\partial \mathbf{v}} = 0 \quad (2.1)$$

\mathbf{x} : Ortsvektor

\mathbf{v} : Geschwindigkeitsvektor

t : Zeit

q_j : Ladung eines Teilchens der Spezies j

m_j : Masse eines Teilchens der Spezies j

\mathbf{E} : Elektrisches Feld am Ort \mathbf{x} zur Zeit t

\mathbf{B} : Magnetisches Feld am Ort \mathbf{x} zur Zeit t

c : Lichtgeschwindigkeit im Vakuum

Zusammen mit den Maxwell-Gleichungen beschreibt sie ein kollisionsfreies Plasma bereits vollständig. Allerdings sind Ort und Geschwindigkeit der einzelnen Teilchen experimentell kaum zugängliche Größen. Die Vlasov-Gleichung kann aber auf Ensemble-Größen transformiert werden, indem man die ersten und zweiten Momente der Gleichung bezüglich der Geschwindigkeiten berechnet. So kann man zu den Variablen Teilchendichte n , durchschnittliche Geschwindigkeit \mathbf{u} und Druck p übergehen.

Nimmt man zusätzlich isotherme oder adiabatische Verhältnisse an, die eine Beziehung zwischen Druck und Teilchendichte herstellen, ergibt sich wiederum eine geschlossene Beschreibung eines kollisionsfreien Plasmas, bestehend aus Kontinuitäts-, Bewegungs- und Zustandsgleichung:

$$\frac{\partial n_j}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \cdot (n_j \mathbf{u}_j) = 0 \quad (2.2)$$

$$n_j \left(\frac{\partial \mathbf{u}_j}{\partial t} + \mathbf{u}_j \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_j}{\partial \mathbf{x}} \right) = \frac{n_j q_j}{m_j} \left(\mathbf{E} + \frac{\mathbf{u}_j \times \mathbf{B}}{c} \right) - \frac{1}{m_j} \frac{\partial p_j}{\partial \mathbf{x}} \quad (2.3)$$

$$\left\{ \begin{array}{ll} p_j = n_j T_j & \text{für } \omega/k \ll v_j \quad (\text{isotherm}) \\ \frac{p_j}{n_j^{(2+N)/N}} = \text{konstant} & \text{für } \omega/k \gg v_j \quad (\text{adiabatisch}) \end{array} \right\} \quad (2.4)$$

Dabei ist T die Temperatur, N die Anzahl der Freiheitsgrade, v_j die thermische Geschwindigkeit der Spezies j sowie ω und k die Frequenz beziehungsweise der Wellenvektor des betrachteten Prozesses.

Aus diesem Modell folgt unter anderem eine Eigenschaft, die die Wechselwirkung von Licht mit Plasma maßgeblich bestimmt: Es erlaubt kollektive Bewegungen der Ladungsträger. Dabei lässt sich die hochfrequente Bewegung der Elektronen (elektronische Plasmawellen) getrennt von der langsameren Bewegung der Ionen (ionische

akustische Wellen) betrachten. Die Wechselwirkung mit Licht wird hauptsächlich von der Bewegung der Elektronen bestimmt. Im Folgenden wird daher die Bewegung der Ionen vernachlässigt. Variablen mit Index e beziehen sich auf die Elektronen.

Die *Wellengleichungen* für elektromagnetische Wellen der Form $\mathbf{E}_{\mathbf{x},t} = \mathbf{E}(\mathbf{x}) e^{-i\omega t}$ in Plasmen erhält man nun aus Gleichung 2.3, indem man alle Terme vernachlässigt, die proportional zu \mathbf{E}^2 sind:

$$\frac{\partial \mathbf{u}_e}{\partial t} = -\frac{e}{m_e} \mathbf{E}(\mathbf{x}) e^{-i\omega t} \quad (2.5)$$

Dieser Ausdruck ist analog zur Kraft auf ein Elektron in einem elektrischen Feld $\mathbf{E}_{\mathbf{x},t}$. Hieraus lässt sich die Konduktivität des Plasmas σ bestimmen, die man in das Induktionsgesetz und das Ampèresche Gesetz einsetzen kann, womit man schließlich die Wellengleichungen erhält:

$$\Delta \mathbf{E} - \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \mathbf{E} = 0 \quad (2.6)$$

$$\Delta \mathbf{B} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \mathbf{B} + \frac{1}{\epsilon} \nabla \epsilon \times (\nabla \times \mathbf{B}) = 0 \quad (2.7)$$

t : Zeit

ω : Kreisfrequenz der ebenen Welle

ϵ : Dielektrizitätszahl des Plasmas

In einem Plasma mit homogener Dichte ist $\nabla \epsilon = 0$ und $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$. In diesem Fall werden die Wellengleichungen für \mathbf{E} und \mathbf{B} identisch:

$$\nabla^2 \mathbf{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \mathbf{E} = 0 \quad (2.8)$$

$$\nabla^2 \mathbf{B} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \mathbf{B} = 0 \quad (2.9)$$

Für ebene Wellen der Form $\mathbf{E}(\mathbf{x}) = \mathbf{E}_0 e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}}$ erhält man hieraus die *Dispersionsrelation* für ebene elektromagnetische Wellen in Plasmen:

$$\omega^2 \epsilon = k^2 c^2 \quad (2.10)$$

Da $\epsilon = 1 - \omega_{pe}^2 / \omega^2$ ist, was aus der Herleitung der Wellengleichungen 2.6 und 2.7 folgt, ergibt sich daraus

$$\omega_{pe}^2 = \omega^2 - k^2 c^2. \quad (2.11)$$

Hierbei ist ω_{pe} die sogenannte *Plasmafrequenz* definiert als:

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{4\pi n_e e^2}{m_e}} \quad (2.12)$$

Das ist die Frequenz des harmonischen Oszillators, den Elektronen im Potential der als statisch angenommenen Ionen in einem Plasma mit Elektronendichte n_e darstellen.

Für $\omega < \omega_{pe}$ wird nach Gleichung 2.11 der Wellenvektor k imaginär und die Welle wird reflektiert. Die Bedingung $\omega = \omega_{pe}$ definiert daher eine *kritische Dichte* n_{cr} , bis zu der sich eine elektromagnetische Welle der Wellenlänge λ ausbreiten kann. Aus Gleichung 2.12 erhält man:

$$n_{cr} = \frac{1}{\lambda^2} \frac{\pi m c^2}{e^2} \simeq \frac{1,1 \cdot 10^{21}}{\lambda^2 / \mu m^2} \frac{1}{cm^3} \quad (2.13)$$

Eine weitere für die Wechselwirkung von Licht mit Plasma charakteristische Größe ist die Geschwindigkeit der Elektronen im Plasma unter Einwirkung der elektromagnetischen Welle. Diese sogenannte *Zittergeschwindigkeit* v_{osc} ergibt sich aus Gleichung 2.5, indem man sie nach der Durchschnittsgeschwindigkeit \mathbf{u}_e der Elektronen auflöst:

$$\mathbf{u}_e = i \frac{e}{m_e \omega} \mathbf{E} e^{-i\omega t} = \frac{e}{m_e \omega} \mathbf{E} e^{-i(\omega t - \frac{\pi}{2})} = v_{osc} \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} e^{-i(\omega t - \frac{\pi}{2})} \quad (2.14)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } \frac{v_{osc}}{c} &= \frac{e |\mathbf{E}|}{m_e c \omega_0} = \frac{e}{m_e c} \frac{\lambda}{2\pi c} \sqrt{\frac{8\pi I}{c}} \\ &= \sqrt{\frac{I}{1,4 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2} \frac{\lambda^2}{\mu m^2}} \end{aligned} \quad (2.15)$$

Viele Absorptionsprozesse skalieren mit der Zittergeschwindigkeit und damit mit $\sqrt{I\lambda^2}$. Der Ausdruck $I\lambda^2$ wird deswegen auch *normierte Intensität* (I_{norm}) genannt.

Beispielsweise zeigt das Verhältnis v_{osc}/c an, ab wann Magnetfelder und relativistische Effekte berücksichtigt werden müssen. Dies ist nach Gleichung 2.15 ab einigen $10^{17} \text{ W } \mu m^2/cm^2$ bis $10^{18} \text{ W } \mu m^2/cm^2$ der Fall (siehe auch WK97 und Ums03), wobei die Gleichung in diesem Bereich dann ihre Gültigkeit verliert. Der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Aufbau erreicht bei 800 nm Wellenlänge Intensitäten I von 10^{15} W/cm^2 bis 10^{16} W/cm^2 . Da für die normierte Intensität $I_{norm} = 0,64 \cdot I$ gilt, befindet man sich damit noch im nicht-relativistischen Bereich.

2.1.2 Absorption von elektromagnetischen Wellen in Plasmen

Die Mechanismen, die zur Absorption elektromagnetischer Wellen in Plasmen beitragen, lassen sich nach zwei Merkmalen kategorisieren: Das eine ist der Kopplungsmechanismus der elektromagnetischen Welle an das Plasma, das andere die Art, auf welche die absorbierte Energie im Plasma verteilt wird.

Die Kopplung kann einerseits mittels direkter Beschleunigung der Ladungsträger durch die elektromagnetische Welle erfolgen, andererseits durch Wechselwirkung mit den kollektiven Feldern der Ladungsträger, welche auf diese Weise indirekt beschleunigt

werden. Die Ladungsträger können ihre gewonnene Energie dann entweder über Stöße oder über kollektive Wechselwirkungsmechanismen im Plasma dissipieren.

Das Modell der *inversen Bremsstrahlung* (auch: *Kollisionsabsorption*⁷) beschreibt den Energieübertrag, der zustande kommt, wenn eine elektromagnetische Welle Elektronen direkt beschleunigt und diese ihre Energie dann über Stöße mit Ionen im Plasma verteilen. Bei niedrigen Intensitäten und langen Impulsdauern ist sie der dominierende Absorptionsmechanismus [GF96]. Inverse Bremsstrahlung ist ein, verglichen mit anderen Absorptionsprozessen, gut verstandener Prozess [WK97]. Trotzdem bestehen für hohe Laserintensitäten und Elektronendichten noch ungeklärte Fragen. Das ist beispielsweise bei Abschirmungseffekten des Plasmas und beim sogenannten Coulomb-Logarithmus der Fall (siehe MB10). Auch der Einfluss von Elektron-Elektron-Kollisionen und von nicht-maxwellischen Elektronengeschwindigkeitsverteilungen ist nicht vollständig verstanden [MB10]. Diese Themen gehen aber sehr in die Details der Plasmaphysik, die nicht das eigentliche Thema dieser Arbeit darstellt und die nicht für das Verständnis der vorgestellten Experimente erforderlich sind, deswegen werden sie in der folgenden Beschreibung ausgeklammert.

Das Modell der *resonanten Absorption* betrachtet die kollektive Antwort des Plasmas auf die elektromagnetische Welle am Ort der kritischen Dichte n_{cr} . Dort ist die Kreisfrequenz der elektromagnetischen Welle gleich der Plasmafrequenz ω_{pe} und das elektrische Feld kann resonant elektronische Plasmawellen anregen. Diese können durch verschiedene Prozesse gedämpft werden. Zunächst können die Elektronen, wie bei der inversen Bremsstrahlung, ihre Energie über Stöße an die Ionen abgeben. Wenn die Zittergeschwindigkeit v_{osc} (siehe Gleichung 2.15) in den Bereich der thermischen Geschwindigkeit v_{th} der Elektronen im Plasma kommt, nimmt die Wahrscheinlichkeit für Stöße jedoch ab und es dominieren kollektive Dämpfungsmechanismen (siehe unten). [MB10]

Laut Wilks und Kruer [WK97] lässt sich der Absorptionsprozess im normierten Intensitätsbereich von $10^{12} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ bis $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ durch diese beiden Mechanismen – inverse Bremsstrahlung und resonante Absorption – beschreiben, solange die Skalenlänge⁸ des Plasmas $L > 0,1 \lambda$ ist. Dabei muss der Dämpfungsmechanismus bei der resonanten Absorption nicht weiter bekannt sein, sondern kann phänomenologisch gehandhabt werden.

Bei normierten Intensitäten über $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ oder sehr kurzen Skalenlängen des Plasmas setzt *kollisionsfreie Absorption* ein. Dabei handelt es sich um eine ganze Anzahl von Mechanismen, die mit unterschiedlichen Modellen beschrieben werden: der Brunel-Effekt⁹, *J × B heating*, *sheath layer inverse bremsstrahlung*, *anomalous skin layer absorption*, *stochastic heating*, *relativistic ponderomotive heating*, *absorption and acceleration by wavebreaking*, *laser dephasing heating*, *Landau damping*, *zero vector*

⁷engl.: *collisional absorption*

⁸Der Quotient aus Dichte und Dichtegradient des Plasmas, also der inverse, normierte Dichtegradient (siehe Gleichung 2.21).

⁹engl.: *vacuum heating*

potential mechanism und Weitere. Leider sind diese Effekte nicht klar voneinander abgegrenzt und es ist nicht immer klar, welche Effekte unter welchen Bedingungen dominieren. Darüber hinaus sind alle diese Modelle konservativ, das heißt, sie sind nicht in der Lage zu beschreiben, warum Teilchen des Plasmas von einem Halbzyklus einer elektromagnetischen Welle beschleunigt werden, nicht aber vom nächsten wieder abgebremst. Somit liefern sie keine physikalische Erklärung dafür, wie Energie von der elektromagnetischen Welle auf das Plasma übertragen werden kann. Ein relativ neues Modell scheint jedoch in der Lage zu sein, eine qualitative Erklärung zu liefern: die *nicht-harmonische Resonanz*¹⁰. Dieses 2008 von Mulser et al. [MBR08] vorgeschlagene Modell erweitert die resonante Absorption auf Bereiche, in denen $\omega \neq \omega_{pe}$ ist und gibt damit die Annahme auf, dass sich die Elektronen des Plasmas im Feld der elektromagnetischen Welle wie *harmonische* Oszillatoren verhalten.

Trotzdem ist aber laut Mulser und Bauer [MB10] nach wie vor Konsens in der Fachgemeinschaft, dass resonante Absorption, Brunel-Effekt und $J \times B$ heating (Heizen des Plasmas durch die oszillierende Komponente der ponderomotiven Kraft) die kollisionsfreie Absorption größtenteils zutreffend beschreiben. Von diesen ist die resonante Absorption wie oben beschrieben bei Intensitäten bis $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ relevant. Der Brunel-Effekt setzt bei $10^{15} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ ein, wenn die Skalenlänge des Plasmas kurz genug ist [WK97]. $J \times B$ heating ist erst ab $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ zu erwarten [KE85].

In den folgenden Abschnitten wird auf inverse Bremsstrahlung, resonante Absorption und den Brunel-Effekt näher eingegangen, da die im Rahmen dieser Doktorarbeit verwendeten normierten Intensitäten $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ nicht erreichen, aber das Plasma wegen der kurzen Impulsdauern und des hohen Kontrasts des Lasersystems durchaus sehr kleine Skalenlängen haben kann.

Inverse Bremsstrahlung

Bei der inversen Bremsstrahlung werden Elektronen des Plasmas durch das elektrische Feld einer elektromagnetischen Welle beschleunigt und verteilen ihre Energie anschließend über Stöße mit den Ionen im Plasma. Ein zusätzlicher Reibungsterm in der Vlasov-Gleichung (Gleichung 2.1) kann diese Stöße modellieren. Die folgenden Herleitungen dieses Abschnitts sind gemäß Kru88 und finden sich dort ausführlicher. Die Vlasov-Gleichung mit Reibungsterm (eingerahmt) lautet:

$$\frac{\partial \Phi_j}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial \Phi_j}{\partial \mathbf{x}} + \frac{q_j}{m_j} \left(\mathbf{E} + \frac{\mathbf{v} \times \mathbf{B}}{c} \right) \cdot \frac{\partial \Phi_j}{\partial \mathbf{v}} = \boxed{\sum_k \frac{\partial \Phi_{jk}}{\partial t}} \quad (2.16)$$

Dabei beschreibt $\partial \Phi_{jk}/\partial t$ die Änderung der Phasenraumverteilungsfunktion der i -ten Spezies durch Kollisionen mit der k -ten Spezies.

¹⁰engl.: *anharmonic resonance*

Unter der Annahme, dass weder Rekombination noch weitere Ionisation stattfindet, führt das zu einem weiteren Term (eingerahmt) in der Bewegungsgleichung (Gleichung 2.3):

$$n_j \left(\frac{\partial \mathbf{u}_j}{\partial t} + \mathbf{u}_j \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_j}{\partial \mathbf{x}} \right) = \frac{n_j q_j}{m_j} \left(\mathbf{E} + \frac{\mathbf{u}_j \times \mathbf{B}}{c} \right) - \frac{1}{m_j} \frac{\partial p_j}{\partial \mathbf{x}} \boxed{- \sum_{k \neq j} \left(\frac{\partial}{\partial t} n_j \mathbf{u}_j \right)_k} \quad (2.17)$$

Die Kontinuitätsgleichung 2.2 und die Zustandsgleichung 2.4 bleiben dabei unverändert. Für eine elektromagnetische Welle, die mit den Elektronen unter Annahme stationärer Ionen wechselwirkt, kann man den zusätzlichen Term durch eine Elektronen-Ionen-Kollisionsfrequenz ν_{ei} beschreiben.

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} n_j \mathbf{u}_j \right)_i = \nu_{ei} n_e \mathbf{u}_e \quad (2.18)$$

Damit erhält man aus Gleichung 2.17 analog zu Gleichung 2.5 die Bewegungsgleichung:

$$\frac{\partial \mathbf{u}_e}{\partial t} = -\frac{e}{m_e} \mathbf{E} - \nu_{ei} \mathbf{u}_e \quad (2.19)$$

Die dielektrische Funktion ϵ bekommt durch den Term $\nu_{ei} \mathbf{u}_e$ einen imaginären Anteil. Elektromagnetische Wellen werden daher vom Plasma absorbiert. Nimmt man an, dass sich die Kollisionsfrequenz linear mit der Elektronendichte und nur langsam auf der Größenordnung der Wellenlänge ändert, kann man mit der WKB-Näherung den Anteil der absorbierten Intensität f_{ib} abschätzen. Für lineare Dichtegradienten der Form $n_e = n_{cr} z/L$ erhält man bei einem Einfallswinkel von θ

$$f_{ib} = 1 - \exp \left(-\frac{32}{15} \frac{L}{c} \nu_{ei}(n_e) \Big|_{n_{cr}} \cos^5 \theta \right) \quad (2.20)$$

$$\text{mit Skalenlänge } L = \frac{n_e}{dn_e/dz} \quad (2.21)$$

$$\text{und } \nu_{ei} = 3 \cdot 10^{-6} Z \frac{n_{cr}}{\text{cm}^3} \left(\frac{T_e}{\text{eV}} \right)^{-3/2} \ln \Lambda . \quad (2.22)$$

Dabei ist T_e die mittlere Elektronentemperatur und Λ der sogenannte *Plasmaparameter*. Letzterer gibt die Anzahl der Teilchen im Plasma an, mit denen ein einzelnes geladenes Teilchen wechselwirkt. Die Anzahl dieser Wechselwirkungspartner ist begrenzt, weil das elektrische Feld eines Teilchens durch die umgebenden Teilchen abgeschirmt wird (*debye shielding*, siehe z. B. Str11). Der Logarithmus des Plasmaparameters wird *Coulomb-Logarithmus* genannt. Der Ausdruck 2.22 für die Kollisionsfrequenz ν_{ei} lässt sich aus der Fokker-Planck-Gleichung für den Wechselwirkungsterm $(\partial \Phi_{jk}/\partial t)$ aus Gleichung 2.16 unter der Annahme bestimmen, dass die Elektronen eine maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung haben.

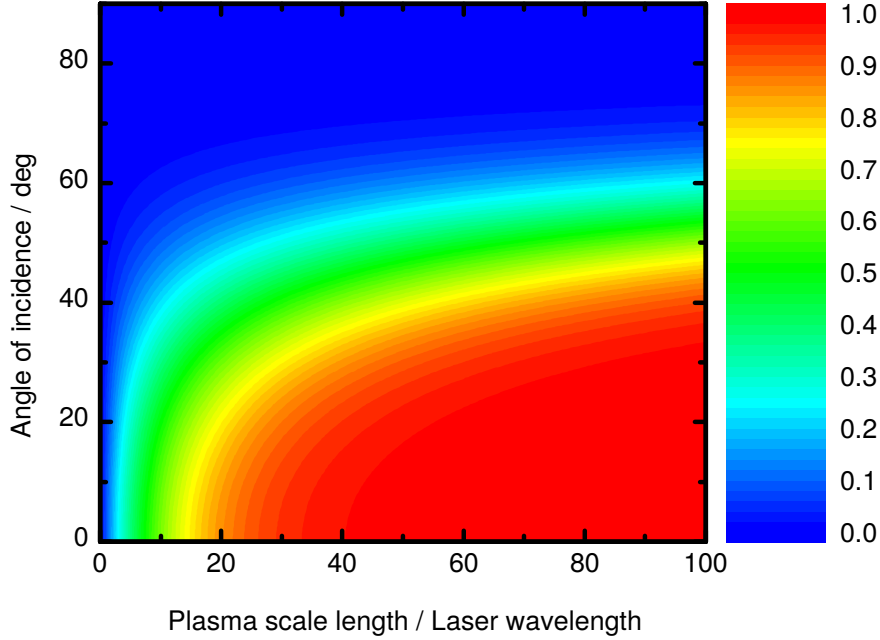


Abbildung 2.1: Absorption durch inverse Bremsstrahlung in Abhängigkeit des Einfallswinkels der elektromagnetischen Welle und der Plasmaskalenlänge in Einheiten der Wellenlänge für $T_e = 1 \text{ keV}$ und $n_e = 10^{21} / \text{cm}^3$.

Die absorbierte Energie kann jedoch ihrerseits wieder die Geschwindigkeitsverteilung beeinflussen. Vernachlässigt man Elektron-Elektron-Kollisionen, verformt sie die Geschwindigkeitsverteilung, welche dadurch ihre maxwellsche Form verliert. Das reduziert die Absorption um etwa den Faktor 2. Nur wenn Elektron-Elektron-Kollisionen die Geschwindigkeitsverteilung ausreichend schnell thermalisieren, bleibt sie maxwellsch und die Absorption hoch. Unterscheiden lassen sich die beiden Fälle mittels des Ausdrucks $Zv_{\text{osc}}^2 / |\mathbf{u}_e|^2$. Ist er $\ll 1$ bleibt die Verteilung maxwellförmig, ist er $\gg 1$ verformt sie sich. [Kru88, Lan80]

Gleichungen 2.20 bis 2.22 zeigen, dass die Absorption durch inverse Bremsstrahlung am größten für niedrige Elektronentemperaturen T_e , lange Dichtegradienten L_n , kleine Einfallswinkel θ und Elemente mit hoher Ordnungszahl Z ist. Abbildung 2.1 zeigt f_{ib} in Abhängigkeit der Plasmaskalenlänge und des Einfallswinkels bei Kupfer für lineare Dichtegradienten. Dazu wurde angenommen, dass die Elektronentemperatur des Plasmas $T_e = 1 \text{ keV}$ und seine Elektronendichte $n_e = 10^{21} / \text{cm}^3$ ist und daraus folgend $\ln \Lambda = 13$ (siehe Kru88). In diesem Fall beginnt die Absorption bei einer Plasmaskalenlänge von einigen Lichtwellenlängen und ist bei senkrechtem Einfall bei dreißig Wellenlängen bereits größer als 90 %. Die Abhängigkeit vom Einfallswinkel ist bis etwa 20° gering,

danach nimmt die Absorption je nach Skalenlänge früher oder später schnell ab, um dann ab etwa 60° bei keiner Skalenlänge mehr effektiv zu sein. Für optimale Absorption durch inverse Bremsstrahlung sollte die Plasmaskalenlänge also möglichst groß sein und das Licht senkrecht einfallen.

Inverse Bremsstrahlung ist der dominante Absorptionsmechanismus bei niedrigeren normierten Laserintensitäten bis hin zu $10^{15} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$; bei höheren Intensitäten wird die Zittergeschwindigkeit der Elektronen vergleichbar mit ihrer thermischen Geschwindigkeit und die Kollisionsfrequenz und mit ihr die Absorption nehmen ab. [GF96]

Resonante Absorption

Die resonante Absorption beschreibt den Energieübertrag von einer elektromagnetischen Welle auf ein Plasma über resonant angeregte Elektronen-Plasmawellen, deren Energie dann im Plasma dissipiert wird.

Dieser Mechanismus existiert nur für den p-polarisierten Anteil einer elektromagnetischen Welle, nicht für den s-polarisierten. Das liegt daran, dass die Elektronendichtefluktuationen, aus denen die Plasmawellen bestehen, nur entstehen können, wenn Elektronen entlang des Dichtegradienten beschleunigt werden und so in Regionen mit anderer Elektronendichte kommen.

Resonant kann die elektromagnetische Welle Plasmawellen nur anregen, wenn die Elektronendichte gleich der kritischen Dichte n_{cr} ist, da dann $\omega = \omega_{\text{pe}}$ ist. Das Plasma reflektiert aber die elektromagnetische Welle bei schrägem Einfall bereits bei einer Dichte von $n_e = n_{\text{cr}} \cos^2 \theta$. Das folgt aus Gleichung 2.8, wenn man eine schräg einfallende p-polarisierte elektrische Welle einsetzt. Dann geht ϵ über in $\epsilon - \sin^2 \theta$ und die kritische Dichte ändert sich entsprechend. Wegen der evaneszenten Welle ist die Feldstärke am Ort der kritischen Dichte aber noch nicht auf Null gesunken, so dass trotz der früheren Reflexion Plasmawellen resonant bei n_{cr} angeregt werden können.

Um einen analytischen Ausdruck für die Effizienz der resonanten Absorption zu finden, kann man nun wie folgt vorgehen. Zunächst muss als treibende Kraft die elektrische Feldstärke am Ort der kritischen Dichte bekannt sein. Für lineare Dichtegradienten verläuft die Feldstärke E ab dem Punkt der Reflexion wie eine Airy-Funktion erster Art $A_i(z)$ für $z > 0$. Dieser Verlauf ist näherungsweise exponentiell. Unter der Annahme, dass die Grenzfläche zwischen Vakuum und Plasma bei $z = 0$, der Dichtegradient $n_e = n_{\text{cr}} z/L$ und die kritische Dichte daher bei $z = L$ ist, berechnet sich die z-Komponente E_z der Feldstärke am Ort der kritischen Dichte folgendermaßen: [Kru88]

$$E_z = \frac{E}{\epsilon(z) \sqrt{2\pi\omega L/c}} \phi(\tau), \quad (2.23)$$

$$\text{mit } \phi \simeq 2,3 \tau \exp(-2\tau^3/3) \quad (2.24)$$

$$\text{und } \tau = (\omega L/c)^{1/3} \sin \theta \quad (2.25)$$

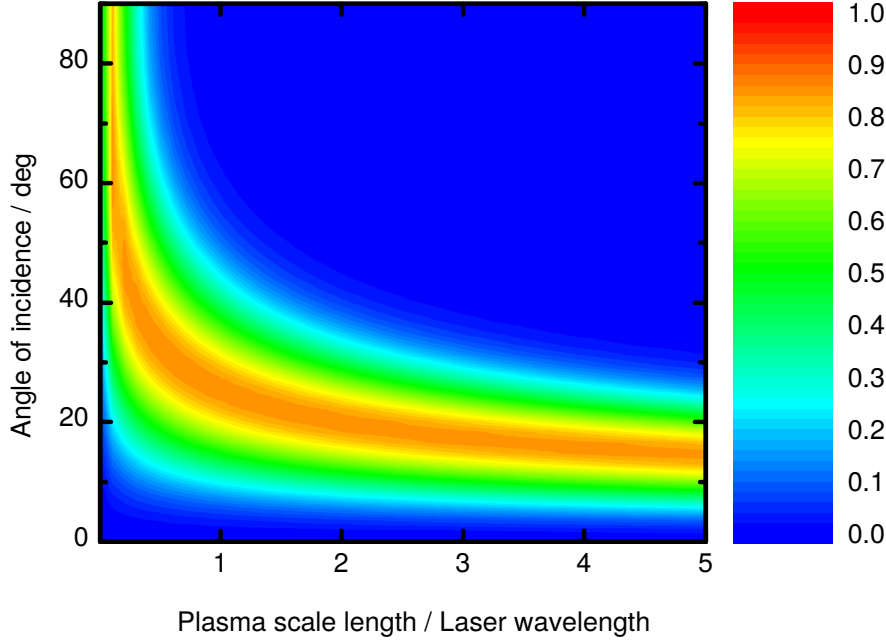


Abbildung 2.2: Resonante Absorption in Abhängigkeit des Einfallswinkels des Lasers und der Plasmaskalenlänge in Einheiten der Laserwellenlänge.

Die resonant angeregten Plasmawellen können nun über verschiedene (sowohl kollisionsale als auch kollisionsfreie) Mechanismen gedämpft werden. Um das zu modellieren, führt man eine Dämpfung der Frequenz ν ein, die klein gegenüber der Frequenz der elektromagnetischen Welle ist; damit geht $\epsilon = 1 - \omega_{pe}^2/\omega^2$ über in $\epsilon = 1 - \omega_{pe}^2/(\omega(\omega + i\nu))$ [Kru88]. Die absorbierte Energie lässt sich nun berechnen aus

$$I_{\text{abs}} = \int_0^\infty \nu \frac{E_z^2}{8\pi} dz \quad (2.26)$$

Setzt man hier den Ausdruck 2.23 für E_z und darin den eben genannten für ϵ ein und führt das Integral aus, so erhält man den Anteil f_{ra} der durch resonante Absorption übertragenen Energie. Dieser ist *unabhängig* von der Dämpfungsfrequenz ν :

$$f_{\text{ra}} \simeq \phi^2(\tau)/2. \quad (2.27)$$

Abbildung 2.2 zeigt die so berechnete Absorption in Abhängigkeit des Einfallswinkels und der Plasmaskalenlänge in Einheiten der Wellenlänge. Für Skalenlängen im Bereich einiger Wellenlängen liegt der optimale Einfallswinkel bei etwa 15° bis 20° und steigt dann für Skalenlängen unterhalb einer Wellenlänge schnell an. Über weite Bereiche der Skalenlänge beträgt die Absorption im Optimum bis zu 85 %. Dieses Optimum stellt

einen Kompromiss zwischen zwei Einflüssen dar: Je größer der Einfallswinkel ist, desto größer wird auch der Anteil des elektrischen Felds in z-Richtung, der die Plasmawellen anregt. Andererseits wird bei größerem Einfallswinkel die Welle früher reflektiert, so dass die Amplitude des elektrischen Felds bis zum Ort der kritischen Dichte hin stärker abnimmt.

Die absorbierte Energie führt zu einer bimaxwellischen Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen im Plasma. Die ursprüngliche Maxwellverteilung bekommt einen hoch-energetischen Ausläufer, der wiederum maxwellförmig ist. Man spricht deswegen im Englischen auch vom *maxwellian tail*. [EK78, WK97]

Resonante Absorption und inverse Bremsstrahlung zusammen sind in einem großen Intensitätsbereich (von $10^{12} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ bis $10^{17} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$) die dominierenden Absorptionsmechanismen bei Skalenlängen in der Größenordnung der Wellenlänge und größer [WK97]. Ort und Wirkungsweise dieser beiden Effekte in einem Plasma mit linearem Dichtegradienten sind in Abbildung 2.3 skizziert.

Brunel-Effekt

Dieser Absorptionsmechanismus wurde erstmals 1987 von Brunel [Bru87] als „*Not-So-Resonant, Resonant Absorption*“ beschrieben. Er ähnelt der resonanten Absorption dahingehend, dass Elektronen entlang des Dichtegradienten des Plasmas getrieben werden und dadurch Energie auf das Plasma übertragen wird. Während die resonante Absorption aber für Plasmaskalenlängen ab der Größenordnung der Wellenlänge des Lasers effektiv ist, gibt es den Brunel-Effekt nur bei kleinen Plasmaskalenlängen ($L_p \ll \lambda$), also in sehr steilen Plasmagradienten. Bei so kleinen Skalenlängen können Plasmawellen nicht mehr resonant angeregt werden, da sie bei jedem Zyklus der elektromagnetischen Welle die resonante Region des Plasmas verlassen. Vielmehr beschleunigt in dieser Situation das elektrische Feld die Elektronen aus dem Plasma heraus ins Vakuum und anschließend wieder zurück ins Plasma. Dies ist in Abbildung 2.4 dargestellt. [WK97]

Um diesen Mechanismus zu modellieren geht man von einem perfekten Leiter aus, der sich im Vakuum befindet und den gesamten Halbraum mit $z \geq 0$ einnimmt. Auf den Leiter fällt nun unter dem Winkel θ eine p-polarisierte, ebene elektromagnetische Welle der Form $\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{E} \sin(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{x})$. Die z-Komponente E_z dieses Felds zieht nun Elektronen aus der Oberfläche heraus, bis das Feld dieser Elektronen das ursprüngliche Feld auf der Oberfläche kompensiert. Dreht sich die Polarität des Felds nach einem Halbzyklus um, werden die Elektronen wieder in Richtung des Plasmas beschleunigt. Sobald sie das Plasma wieder erreichen, sind sie nach Modellannahme in einem perfekten Leiter und damit außerhalb des Einflusses von E_z . So wird die kinetische Energie, die ein Elektron zum Zeitpunkt des Wiedereintritts hat, von der elektromagnetischen Welle auf das Plasma übertragen.

Die dabei absorbierte Energie \mathcal{E}_{abs} pro Fläche A ist nach Bru87

$$\mathcal{E}_{\text{abs}} = \eta \frac{N}{A} \frac{1}{2} m_e v_z^2. \quad (2.28)$$

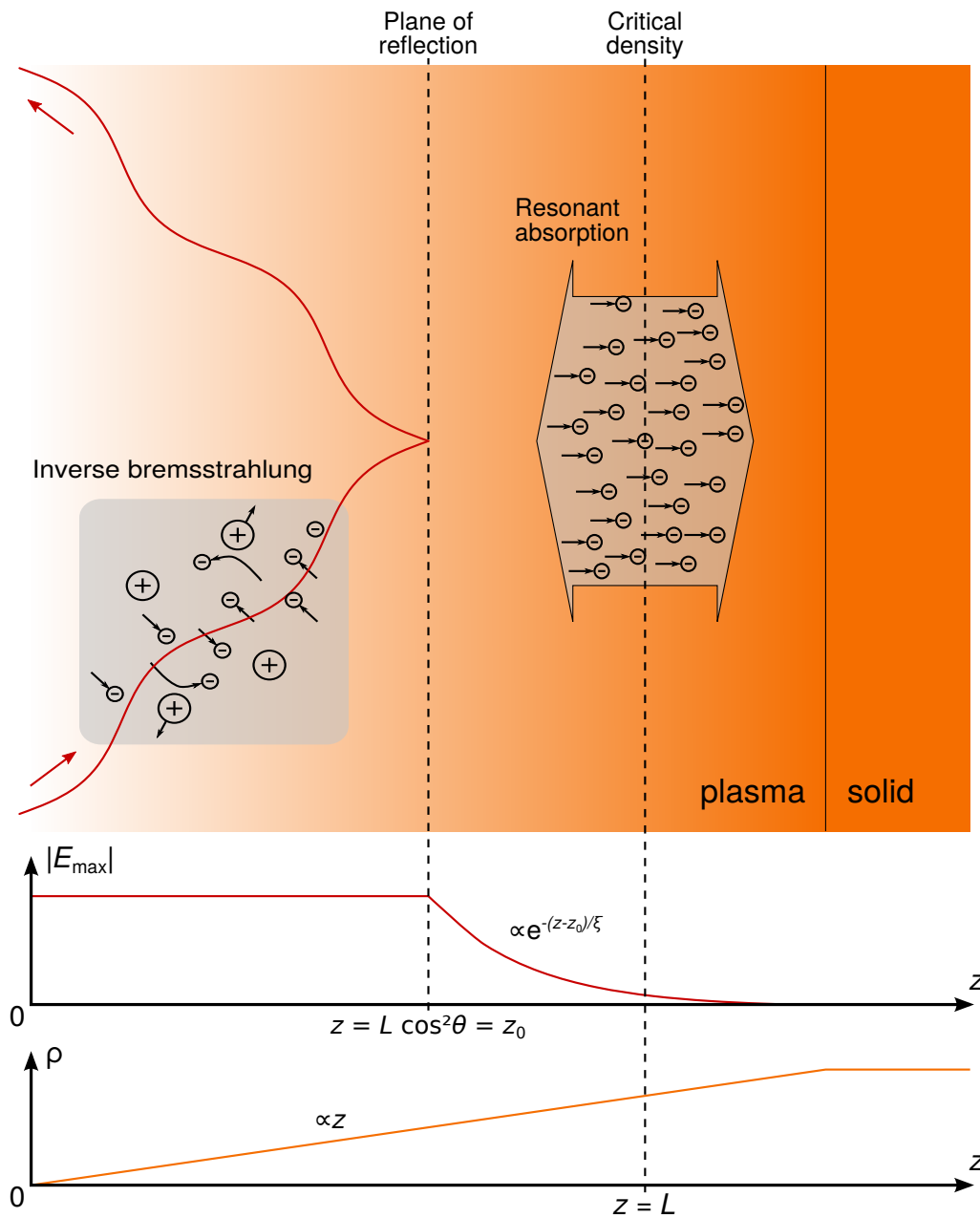


Abbildung 2.3: Inverse Bremsstrahlung und resonante Absorption in einem Plasma mit linearem Dichtegradienten und großer Skalenlänge. Die einfallende elektromagnetische Welle wird noch vor der kritischen Dichte (Dichte: ρ) im Plasma reflektiert. Im Bereich links der Reflexionsebene wird Energie durch inverse Bremsstrahlung absorbiert. Rechts der Reflexionsebene fällt die Amplitude des elektrischen Felds $|E_{\max}|$ exponentiell ab und regt im Bereich der kritischen Dichte resonant Elektronenwellen an, die ebenfalls Energie auf das Plasma übertragen (resonante Absorption).

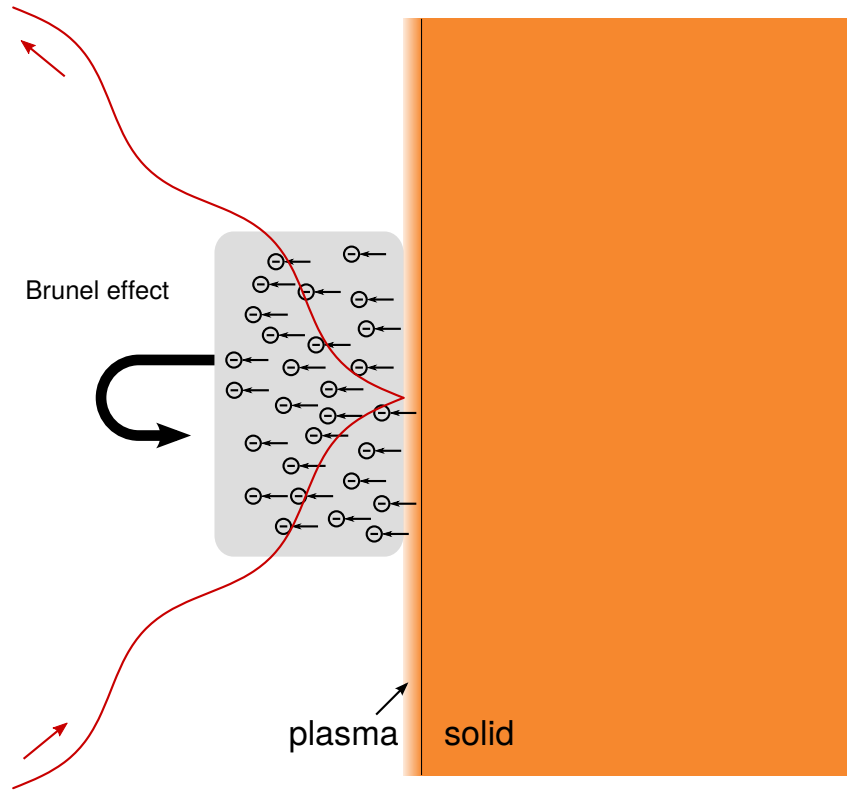


Abbildung 2.4: Brunel-Effekt in einem Plasma mit stufenförmigem Dichtegradienten und kleiner Skalenlänge. Die einfallende elektromagnetische Welle wird vom Plasma größtenteils reflektiert. Auf der Oberfläche baut sich daher ein oszillierendes elektrisches Feld mit einer Komponente entlang der Flächennormalen auf, das Elektronen aus der Oberfläche heraus und im nächsten Halbzzyklus wieder hinein beschleunigt.

Die Zittergeschwindigkeit v_z für das elektrische Feld senkrecht zur Oberfläche E_z liefert Gleichung 2.15. Der Faktor η ist ein Maß für die Effizienz des Energieübertrags und nach einer einfachen Abschätzung gemäß Bru87 gleich 1,75. Die Anzahl der emittierten Elektronen N pro Fläche A lässt sich mittels des Gaußschen Satzes in integraler Form bestimmen:

$$\oint \mathbf{E} \cdot d\mathbf{a} = 4\pi Q_{\text{enc}} \quad (2.29)$$

Wählt man als Volumen einen Quader mit Seitenflächen A parallel zur Oberfläche des Plasma, der die Elektronen außerhalb des Plasmas und dessen Oberfläche einschließt (siehe z. B. Gri99), so gibt die linke Seite des Gaußschen Satzes AE_z . Die eingeschlossene Ladung Q_{enc} ist gleich Ne . Daraus folgt

$$\frac{N}{A} = \frac{E_z}{4\pi e} \quad (2.30)$$

Setzt man das in Gleichung 2.28 ein und ersetzt mit Hilfe von Gleichung 2.15 den Ausdruck eE_z/m_e durch $E_z^2/(\omega v_z)$, erhält man für die absorbierte Energie pro Fläche \mathcal{E}_{abs}

$$\mathcal{E}_{\text{abs}} = \frac{\eta}{8\pi} \frac{E_z^2}{\omega} v_z . \quad (2.31)$$

Um davon auf die absorbierte Intensität I_{abs} zu kommen, teilt man durch die Dauer einer Periode $2\pi/\omega$:

$$I_{\text{abs}} = \frac{\eta}{8\pi} \frac{E_z^2}{2\pi} v_z \quad (2.32)$$

Mit der Intensität der einlaufenden Welle $I_{\text{in}} = cE^2 \cos \theta / (8\pi)$ gibt das den Anteil $f_{\text{be}} = I_{\text{abs}}/I_{\text{in}}$ der absorbierten Intensität:

$$f_{\text{be}} = \frac{\eta}{2\pi} \frac{v_z E_z^2}{c E^2} \frac{1}{\cos \theta} \quad (2.33)$$

Da nach Gleichung 2.15 für die Zittergeschwindigkeit $v_{\text{osc}} = eE/(m_e \omega)$ und für deren z-Komponente $v_z = eE_z/(m_e \omega)$ gilt, folgt daraus

$$f_{\text{be}} = \frac{\eta}{2\pi} \frac{v_z^3}{c v_{\text{osc}}^2} \frac{1}{\cos \theta} . \quad (2.34)$$

Bei niedrigen Werten von f_{be} wird der Großteil der elektromagnetischen Welle reflektiert und es gilt $E_z = 2E \sin \theta$ und damit, wegen Gleichung 2.15, $v_z = 2v_{\text{osc}} \sin \theta$. Damit vereinfacht sich Gleichung 2.34 zu

$$\begin{aligned} f_{\text{be}} &= \frac{\eta}{2\pi} \frac{v_{\text{osc}}}{c} 8 \frac{\sin^3 \theta}{\cos \theta} \\ &\stackrel{(2.15)}{=} \eta \sqrt{\frac{I}{8,6 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2} \frac{\lambda^2}{\mu\text{m}^2}} \frac{\sin^3 \theta}{\cos \theta} . \end{aligned} \quad (2.35)$$

Man beachte, dass hier f_{be} unrealistischerweise größer als eins werden kann. Das reflektiert die Tatsache, dass dieser Ausdruck nur für $v_{\text{osc}} \ll c$ gilt und nur, wenn der Großteil der Welle reflektiert und nicht absorbiert wird.

Für relativistische Geschwindigkeiten muss in Gleichung 2.28 der Term für die kinetische Energie $m_e v_z^2/2$ durch den relativistischen Ausdruck $(\gamma - 1) m_e c^2$ ersetzt werden, wobei $\gamma = \sqrt{1 + v_{\text{osc}}^2/c^2}$. Damit erhält man nach Bru87 analog zu Gleichung 2.34:

$$f_{\text{be}} = \frac{\eta}{\pi} \frac{c v_{\text{osc}} \left(\sqrt{1 + v_{\text{osc}}^2/c^2} - 1 \right)}{v_z^2 \cos \theta} \quad (2.36)$$

Außerdem muss man die Absorption, wenn sie groß wird, in der Intensität der reflektierten Welle berücksichtigen. Nach Bru87 gilt dann:

$$E_z = E \left(1 + \sqrt{1 - f_{\text{be}}} \right) \sin \theta \quad (2.37)$$

Dieser Ausdruck erlaubt aber keine einfache Form für f_{be} wie Gleichung 2.34.

Der Brunel-Effekt wird bei Intensitäten ab $10^{16} \text{ W } \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ und Skalenlängen $L < 0,1 \lambda$ dominant gegenüber inverser Bremsstrahlung und resonanter Absorption [Bru87, GB92] und ist umso stärker, je größer θ ist.

Die absorbierte Energie wird im Rahmen dieses Modells von einer Population superheißer Elektronen getragen, deren Energie proportional zu v_{osc}^2 ist. [Bru87]

2.2 Erzeugung von Röntgenstrahlung durch laserbeschleunigte Elektronen

Nachdem sich der vorhergehende Abschnitt mit der Beschleunigung von Elektronen durch Laserimpulse befasst hat, wird in diesem die Bewegung dieser Elektronen in Festkörpern und die Erzeugung der Röntgenstrahlung beschrieben.

2.2.1 Schnelle Elektronen in Festkörpern

Bewegen sich Elektronen durch einen Festkörper, verlieren sie durch verschiedene Effekte Energie. Diese Energieverluste lassen sich aufteilen in *elektronisch* und *radiativ* vermittelte. Die elektronischen Verluste beschreiben die Wechselwirkung mit den Hüllenelektronen der Atome, wodurch die Atome elektronisch angeregt und ionisiert werden. Die radiativen Energieverluste (auch: *Strahlungsverluste*) sind diejenigen, die in Bremsstrahlung umgesetzt werden, welche die Elektronen aufgrund von Beschleunigung in den elektrischen Feldern der Atome aussenden. Als charakteristische Größe für den Energieverlust der Elektronen dE auf einer Strecke dx im Material ist das materialspezifische *Bremsvermögen* $S(x)$ definiert:

$$S(x) = -\frac{dE}{dx} \quad (2.38)$$

Die elektronische Anteil dieser Verluste S_{el} lässt sich prinzipiell nach dem Modell von Bethe [Bet30, Bet32] beschreiben. In nicht-relativistischer Näherung geben die Elektronen ihre Energie demnach nach

$$S_{el}(x) \propto \frac{1}{E} \ln E, \quad (2.39)$$

an das Medium ab. Bei relativistischen Energien und bei niedrigen Energien im Bereich der Bindungsenergie der innersten Elektronen der Atome trifft diese einfache Formel allerdings nicht zu. Für den ersten Fall gilt eine relativistische Form von Gleichung 2.39 (siehe z. B. Sig06), welche zusätzlich wegen des Dichte- bzw. Polarisierungseffekts um Korrekturfaktoren erweitert werden muss [Ber05, SSB82]. Für den niedrigen Energiebereich existieren sogenannte Schalenkorrekturen¹¹, siehe z. B. Coh00. Es existieren

¹¹engl.: *shell corrections*

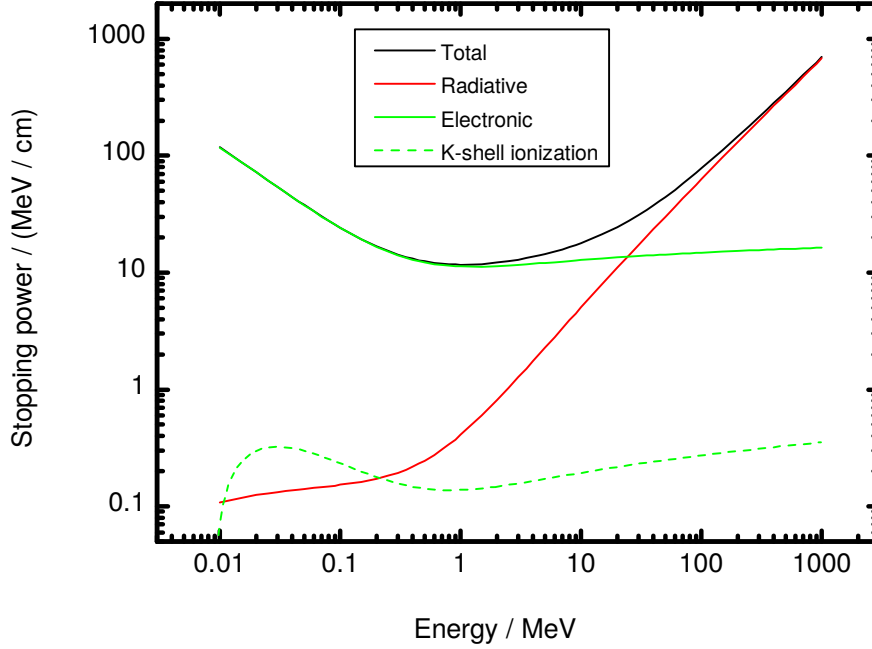


Abbildung 2.5: Bremsvermögen in Kupfer. Elektronisches, radiatives und totales nach Ber05 sowie Bremsvermögen der K-Schalen-Ionisation nach Bot09. Schalenkorrekturen sind nicht berücksichtigt. Das elektronische Bremsvermögen beinhaltet die K-Schalen-Ionisation. Ein lokales Maximum der K-Schalen-Ionisation liegt bei etwa 30 keV.

auch Modelle, welche das Bremsvermögen für beliebige Elektronenenergien wiedergeben können [BS08, Llo14]. Darüber hinaus sind analytische Formeln [Bot09] verfügbar, die den Wirkungsquerschnitt für die K-Schalen-Ionisation allein angeben, der zusammen mit der K_α -Fluoreszenzquantenausbeute (emittierte K_α -Photonen pro ionisiertem Elektron aus der K-Schale) die Emission von K_α -Strahlung bestimmt.

Das Bremsvermögen durch Strahlungsverluste S_{rad} wird durch die Bethe-Heitler-Formel [BH34] beschrieben. In einfacher Näherung gilt

$$S_{\text{rad}}(x) \propto E \ln E . \quad (2.40)$$

Konkrete Werte sind in SB85 angegeben und in der ESTAR-Datenbank des NIST [Ber05] nachschlagbar.

Abbildung 2.5 zeigt den Verlauf der verschiedenen Anteile des Bremsvermögens mit der Energie der Elektronen für Kupfer nach der ESTAR-Datenbank bzw. der analytischen Formel aus Bot09. Schalenkorrekturen sind nicht berücksichtigt, deswegen beginnen die dargestellten Daten erst bei 10 keV. Bis in den Bereich von einigen MeV ist das elektronische Bremsvermögen dominant, ab etwa 20 MeV wird das radiative stärker

als das elektronische. Die K-Schalen-Ionisation hat ein lokales Maximum bei 30 keV. Für die Erzeugung von K_α -Strahlung sind daher Elektronenenergien um diesen Wert optimal. Ab 1 GeV ist der Wirkungsquerschnitt der K-Schalen-Ionisation zwar größer, jedoch wird bei so hohen Energien auch deutlich mehr Strahlung anderer Wellenlänge erzeugt, die das Signal-Rausch-Verhältnis verschlechtern würde. Außerdem sind so hohe Energien technisch nur sehr aufwendig zu erzielen.

Bei der Anwendung der eben vorgestellten Theorie auf lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen ist zu beachten, dass die Daten aus allen angegebenen Quellen für Festkörper gelten. Es wird also implizit davon ausgegangen, dass die schnellen Elektronen im Plasma erzeugt werden, aber maßgeblich nur mit kaltem Festkörper wechselwirken beziehungsweise dass sich die Parameter im Plasma nicht wesentlich von denen im Festkörper unterscheiden. Ersteres ist im Fall der Brunel-Absorption eine gute Näherung, da das Plasma nur wenig ausgedehnt ist im Vergleich zur freien Weglänge von Elektronen mit Energien im Bereich der K-Schalen-Ionisationsenergie (für Kupfer einige 10 μm [Ber05]). Im Fall von inverser Bremsstrahlung und resonanter Absorption kann diese Näherung jedoch schlechter sein. Dann muss beispielsweise von einer reduzierten Fluoreszenzquantenausbeute der K_α -Emission ausgegangen werden [Sal02].

2.2.2 Modell zur Röntgenerzeugung durch schnelle Elektronen

Im Folgenden soll gezeigt werden, wie mit der Theorie des letzten Abschnitts aus einer bekannten Elektronengeschwindigkeitsverteilung konkrete Werte für die Effizienz der Erzeugung von K_α -Strahlung gewonnen werden können. Dazu wird das Modell von Salzmann et al. [Sal02] vorgestellt, da es gegenüber anderen Modellen analytisch, relativ einfach und instruktiv ist und wichtige Einsichten ermöglicht. Außerdem macht es speziell Aussagen über die Verwendung dünner Folien als Zielmaterial, wie sie auch an der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle zum Einsatz kommen.

Das Modell betrachtet Elektronen einer gegebenen Geschwindigkeitsverteilung, die auf ein Ziel endlicher Dicke auftreffen. Die Bewegung der Elektronen wird dabei eindimensional behandelt. Die Emission von Röntgenstrahlung lässt sich aber in Abhängigkeit des Winkels θ zur Flugrichtung der Elektronen angeben. Das Modell nimmt an, dass die Energieverteilung $f(E)$ der Elektronen einer Boltzmann-Verteilung mit Temperatur T_h (in keV) entspricht. Sie ist demnach gegeben durch

$$f(E) = \frac{1}{T_h} e^{-E/T_h} . \quad (2.41)$$

Für das Bremsvermögen verwenden die Autoren eine Näherung, die bis in den Bereich einiger 100 keV gilt:

$$S(x) = -\frac{dE}{dx} = -AE^{-\alpha} \quad (2.42)$$

Dabei sind A und α materialabhängige positive Konstanten. Daraus lässt sich ein Zusammenhang zwischen der Elektronenenergie E bei einer gewissen Eindringtiefe x und der Anfangsenergie der Elektronen E_0 , die sie vor Eintritt in den Festkörper haben, herleiten:

$$\begin{aligned} x &= \int_0^x dx' = \int_E^{E_0} \frac{dE'}{dE'/dx} = \\ &= \frac{1}{(1+\alpha)A} (E_0^{\alpha+1} - E^{\alpha+1}) \end{aligned} \quad (2.43)$$

$$\Rightarrow E_0(E, x) = \left[(1+\alpha)Ax + E^{(1+\alpha)} \right]^{\frac{1}{1+\alpha}} \quad (2.44)$$

Von der Gesamtzahl der heißen Elektronen N_h ist die Anzahl dN_h derjenigen mit Energie E in einem Tiefenintervall $[x, x + dx]$ gegeben durch

$$dN_h = N_h f(E_0(E, x)) dx. \quad (2.45)$$

Daraus erhält man die Anzahl der Atome im genannten Tiefenintervall, von denen ein Elektron der K-Schale ionisiert wurde, durch Multiplikation mit der Teilchendichte des Materials n_A und dem Wirkungsquerschnitt für K-Schalen-Ionisation $\sigma_K(E)$. Dieser Wert kann dann weiter mit der Fluoreszenzquantenausbeute für K_α -Strahlung ω_{K_α} multipliziert werden, um auf die Gesamtzahl der im gegebenen Tiefenintervall erzeugten K_α -Photonen zu kommen. Berücksichtigt man noch die (Re-)Absorption der K_α -Photonen auf dem Weg aus dem Material an dessen Oberfläche durch den Wirkungsquerschnitt σ_{ph} und betrachtet nur die K_α -Photonen, die unter einem gewissen Raumwinkel Ω_D im Winkel θ zur Flugrichtung der Elektronen auftreten, erhält man insgesamt:

$$\begin{aligned} dN_{K_\alpha} &= dN_h \omega_{K_\alpha} n_A \sigma_K(E) dx \frac{\Omega_D}{4\pi} \\ &\cdot \begin{cases} \exp(-n_a \sigma_{ph} x / |\cos \theta|) & \text{für } \frac{\pi}{2} < \theta \leq \pi \quad (\text{rückwärts}) \\ \exp(-n_a \sigma_{ph} (d-x) / |\cos \theta|) & \text{für } 0 < \theta \leq \frac{\pi}{2} \quad (\text{vorwärts}) \end{cases} \end{aligned} \quad (2.46)$$

Daraus erhält man mit der Definition einer mittleren freien Weglänge für Photonen

$$\lambda_{\text{mfp}}(\theta) = \frac{|\cos \theta|}{n_A \sigma_{ph}} \quad (2.47)$$

und anschließender Integration aus Gleichung 2.46 folgenden Ausdruck:

$$N_{K_\alpha} = N_h n_A \omega_K \frac{\Omega_D}{4\pi} \frac{\lambda_{\text{mfp}}}{T_h} \int_0^\infty dE \sigma_K(E) Q_\pm(E) \quad (2.48)$$

Q_{\pm} ist dabei eine energieabhängige, dimensionslose Größe, die sich mit den Substitutionen $y = x/\lambda_{\text{mfp}}$ und $\xi_d = d/\lambda_{\text{mfp}}$ folgendermaßen schreiben lässt:

$$Q_{-}(E) = \int_0^{\xi_d} dy \exp \left(- \left[\frac{E_0(E, y\lambda_{\text{mfp}})}{T_h} + y \right] \right) \quad (\text{rückwärts}) \quad (2.49)$$

$$Q_{+}(E) = \int_0^{\xi_d} dy \exp \left(- \left[\frac{E_0(E, y\lambda_{\text{mfp}})}{T_h} + \xi_d - y \right] \right) \quad (\text{vorwärts}) \quad (2.50)$$

Um unterschiedliche Experimenten mit verschiedener Laserimpulsenergie besser miteinander vergleichen zu können, ist es sinnvoll, statt Anzahl der produzierten Photonen $N_{K_{\alpha}}$ die Effizienz ε_f der K_{α} -Produktion zu betrachten. Dazu teilt man Gleichung 2.48 durch die Anzahl der heißen Elektronen N_h und den Raumwinkel Ω_D . Damit erhält man folgenden Ausdruck für die Effizienz, welcher die Zahl der K_{α} -Photonen pro Sterad pro Elektron angibt:

$$\varepsilon_f = \frac{1}{4\pi} n_A \omega_K \frac{\lambda_{\text{mfp}}}{T_h} \int_0^{\infty} dE \sigma_K(E) Q_{\pm}(E) \quad (2.51)$$

Für ein gegebenes Zielmaterial ist diese Formel nur von der Temperatur der heißen Elektronen T_h , der Dicke des Zielmaterials d und dem Beobachtungswinkel θ zur Flugrichtung der Elektronen abhängig.

Salzmann et al. haben am Beispiel von Titan die Abhängigkeit der K_{α} -Erzeugung von der Dicke des Zielmaterials berechnet.¹² Abbildung 2.6 zeigt den Verlauf von Gleichung 2.48 für Emission in und entgegen der Elektronenflugrichtung (bei konstantem N_h). Man erkennt, dass in Vorwärtsemission (in Flugrichtung) eine optimale Zielmaterialdicke existiert, die von der Elektronentemperatur abhängt.

Hiervon ausgehend haben die Autoren die optimale Zielmaterialdicke für Elektronentemperaturen von wenigen keV bis knapp 500 keV bestimmt. Dies zeigt Abbildung 2.7. Das Optimum für die Rückwärtsemission wurde dabei auf 80 % des Maximalwerts festgesetzt. Bei diesem Wert ist das Verhältnis von charakteristischer Strahlung zu Bremsstrahlung größer. Außerdem ist weniger „Nachglühen“ des Plasmas zu erwarten, welches niederenergetischere Strahlung über die Impulsdauer hinaus verursacht (siehe Sal02, Rei00). Beide Effekte verschlechtern bei einer Messung das Signal-Rausch-Verhältnis. In Rückwärtsemission steigt die optimale Dicke bei hohen Elektronentemperaturen nur noch langsam an, da quasi alle von den schnellen Elektronen tief im Material erzeugten K_{α} -Photonen auf dem Weg zur Oberfläche reabsorbiert werden.

Plottet man nun statt der Anzahl der erzeugten K_{α} -Photonen $N_{K_{\alpha}}$ die maximale Effizienz ε_f der K_{α} -Erzeugung in Abhängigkeit der Elektronentemperatur bei jeweils optimaler Zielmaterialdicke, erhält man den in Abbildung 2.8 gezeigten Graphen. Hier sieht man, dass die maximale Effizienz ein Maximum hat – für das hier betrachtete

¹²Diese und weitere Daten aus Sal02 wurden für die folgende Darstellung per Software [Roh11] aus der Veröffentlichung extrahiert.

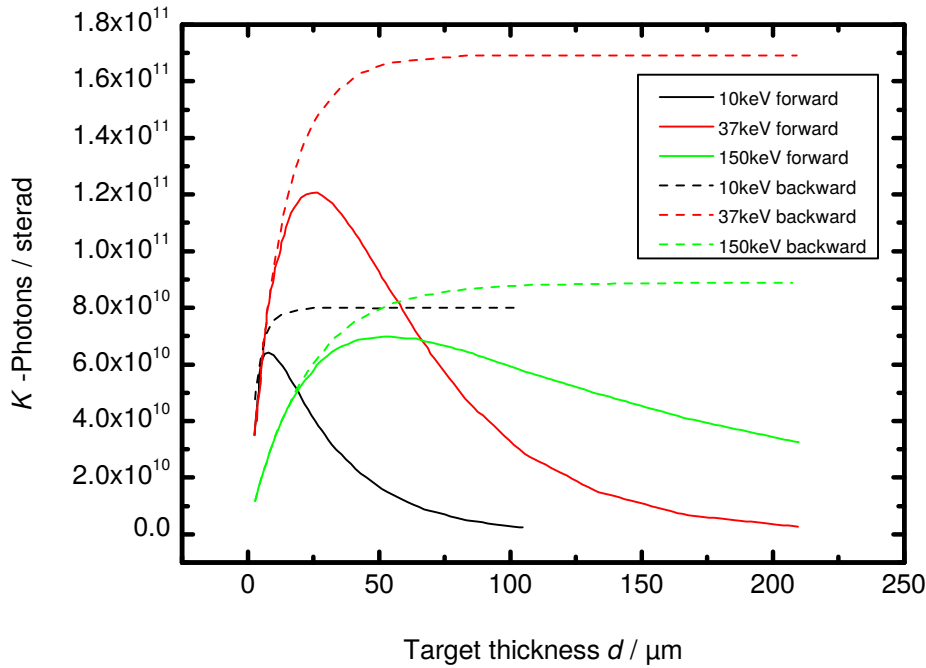


Abbildung 2.6: K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Materialdicke. Der Graph zeigt die Anzahl an K_α -Photonen pro Sterad für Vorwärts- und Rückwärtsrichtung bei konstanter Elektronenzahl für verschiedene Elektronentemperaturen. In Vorwärtsrichtung existiert eine optimale Zielmaterialdicke, die abhängig von der Elektronentemperatur ist. (Daten entnommen aus Sal02.)

Titan in Rückwärtsrichtung bei etwa 120 keV und in Vorwärtsrichtung bei ca. 150 keV. Für ein gegebenes Zielmaterial existiert also sowohl eine optimale Zielmaterialdicke (Abb. 2.6) als auch eine optimale Elektronentemperatur (Abb. 2.8).

Für den eben erwähnten Graphen 2.8 wurde angenommen, dass die Anzahl der heißen Elektronen N_h konstant ist. Mit steigender Elektronentemperatur steigt daher auch die Gesamtenergie der Elektronen. Aus experimenteller Sicht ist es sinnvoller davon auszugehen, dass ein Lasersystem mit konstanter Impulsenergie einen gewissen Anteil dieser Energie in den Elektronen deponiert. Die Gesamtenergie aller Elektronen ist damit festgelegt, die Elektronentemperatur kann aber durch Variation der Laserlichtintensität auf der Oberfläche des Zielmaterials eingestellt werden – zumindest innerhalb gewisser Grenzen, die von den Absorptionsmechanismen gesetzt werden.

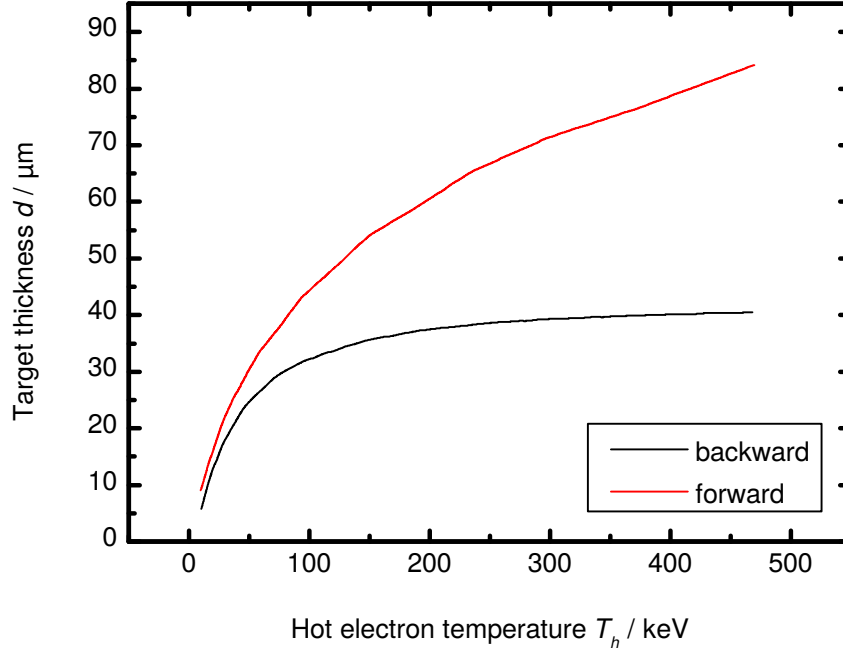


Abbildung 2.7: Optimale Zielmaterialdicke für Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur. Die optimale Dicke entspricht in Vorwärtsrichtung der Position der Maxima in Abbildung 2.6. Für Rückwärtsemission sind es die Punkte, an denen 80 % des Maximums erreicht werden. (Daten entnommen aus Sal02.)

Um Gleichung 2.51 mit der Bedingung konstanter Gesamtenergie in den Elektronen darzustellen, betrachtet man zunächst die durchschnittliche Energie $\langle E \rangle$ und die Gesamtenergie E_{tot} der Elektronen einer Boltzmann-Verteilung:

$$\langle E \rangle = \int_0^\infty E \cdot f(E) dE = \int_0^\infty \frac{E}{T_h} e^{-E/T_h} dE = T_h \quad (2.52)$$

$$E_{\text{tot}} = \int_0^\infty E \cdot dN(E) dE = N_h \int_0^\infty E \cdot f(E) dE = N_h T_h \quad (2.53)$$

Wird eine Energie U_a von den Elektronen absorbiert, die zu einer mittleren Temperatur T_h führt, ist deren Gesamtzahl demnach $N_h = U_a/T_h$. Um die Effizienz bei konstanter Gesamtenergie darzustellen, muss also Gleichung 2.51 bzw. der Graph in Abbildung 2.8 durch T_h geteilt werden. Abbildung 2.9 zeigt den daraus resultierenden Graphen mit einer Gesamtenergie von 100 mJ in den heißen Elektronen, die Maxima der beiden Graphen liegen etwa bei 35 keV und damit deutlich niedriger als bei konstanter Anzahl der Elektronen.

Die Position dieses Optimums ist von der Ordnungszahl Z des Zielmaterials abhängig. Abbildung 2.10 zeigt die optimalen Temperaturen für ausgewählte Elemente. Der

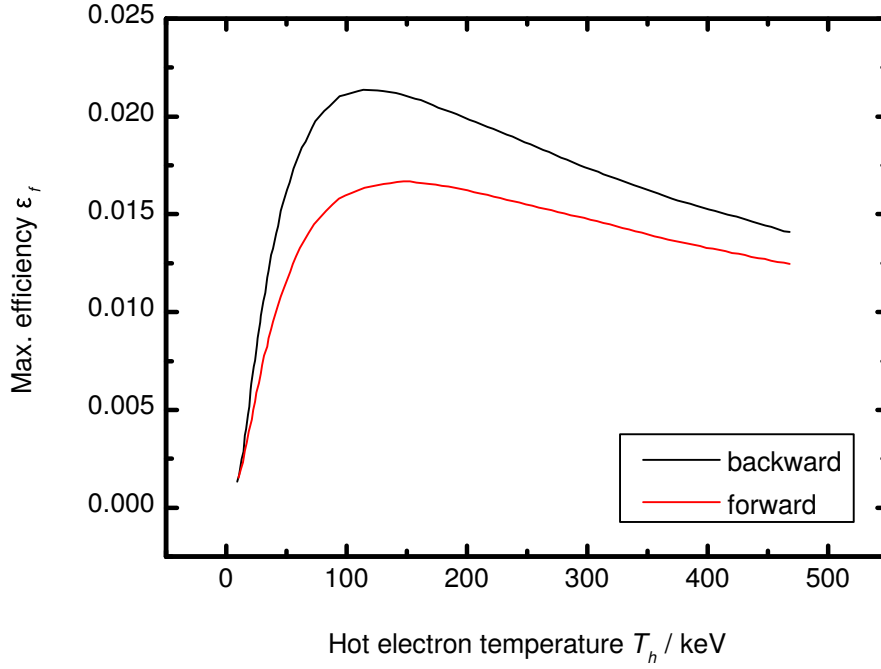


Abbildung 2.8: Maximale Effizienz der K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur. Die Werte gelten für optimale Zielmaterialdicke nach Abbildung 2.7. Die Effizienz hat ein Maximum bei etwa 120 keV bzw. 150 keV. (Daten entnommen aus Sal02.)

Graph zeigt, dass das optimale Verhältnis von Elektronentemperatur T_h zur K-Schalen-Ionisierungsenergie E_K mit steigender Ordnungszahl exponentiell abfällt, während der absolute Wert von T_h exponentiell steigt. Die Abhängigkeit von E_K ist nicht sehr stark, so dass das Optimum um den Faktor 3 von etwa $12E_K$ bei Aluminium ($Z = 13$) auf $4E_K$ für Gold ($Z = 79$) abnimmt.

Im Folgenden wird nun die Gültigkeit dieses Modells diskutiert. Bei der Herleitung des Bezugs zwischen der Energie der Elektronen und ihrem im Zielmaterial zurückgelegtem Weg (Gleichungen 2.43 und 2.44) wurde angenommen, dass die Elektronen sich geradlinig (eindimensional) bewegen. Elastische Streuung wurde dadurch implizit vernachlässigt. Sie reduziert die Eindringtiefe für Elektronen, da diese durch elastische Streuung abgelenkt werden. Um die Auswirkungen davon abschätzen zu können, haben Salzmann et al. eine Monte-Carlo-Simulation durchgeführt (für Titan mit $T_h = 37$ keV), die elastische Streuung berücksichtigte. Die Simulation ergab eine um bis zu 20 % reduzierte Effizienz ϵ_f und eine um 30 % bis 40 % reduzierte optimale Zielmaterialdicke d . Der qualitative Verlauf der Kurven in Abbildung 2.6 blieb jedoch erhalten. Die Autoren gehen daher davon aus, dass der Einfluss der elastischen Streuung auch bei anderen Materialien und Elektronentemperaturen ähnlich ist und die qualitativen Aussagen des

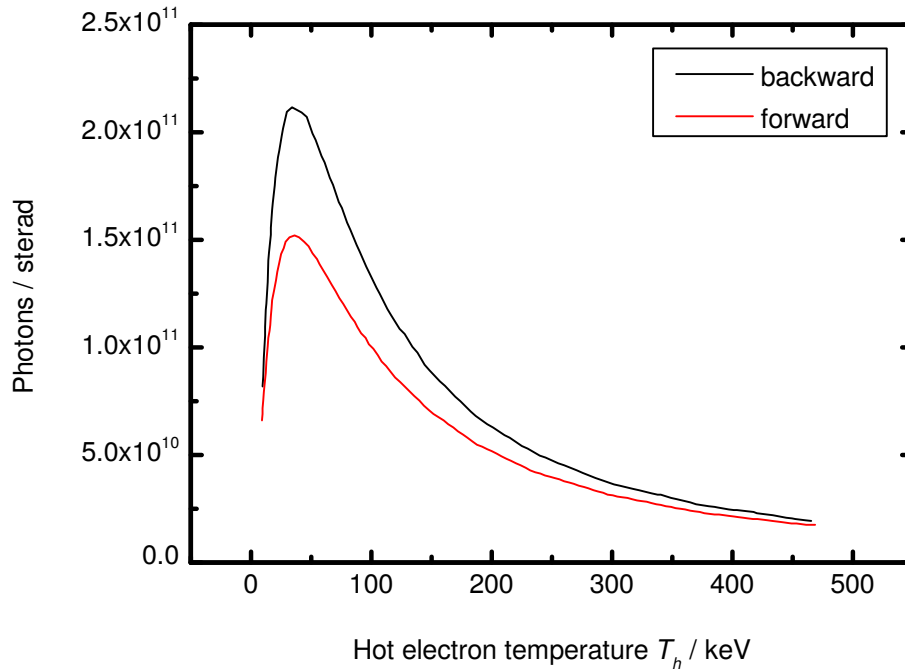


Abbildung 2.9: K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur bei optimaler Zielmaterialdicke und konstanter Gesamtenergie der Elektronen. Die jeweils optimale Zielmaterialdicke ergibt sich aus Abbildung 2.7. Die Maxima befinden sich im Vergleich zu Abbildung 2.8 bei niedrigeren Elektronentemperaturen von etwa 30 keV. (Daten entnommen aus Sal02.)

Modells zutreffend sind. Die Abhängigkeit der optimalen Elektronentemperatur von der Ordnungszahl des Zielmaterials (Abb. 2.10) wird durch das Vernachlässigen der elastischen Streuung vermutlich abgeschwächt.

Das Modell berücksichtigt außerdem nicht den Effekt der elektrostatischen Inhibierung. Durch die in das Zielmaterial eindringenden Elektronen baut sich ein elektrisches Feld auf, das die Elektronen abbremst. Dieses Feld wird durch Ausgleichsströme im umgebenden Zielmaterial abgebaut. Je nach Leitfähigkeit des Materials, die auch stark vom Aggregatzustand abhängt, kann die Eindringtiefe der Elektronen so beträchtlich reduziert werden. Dieser Effekt ist bei Titan wegen seiner schlechteren Leitfähigkeit ausgeprägter als bei Kupfer. [Bel97, Pis00, Kha12]

Eine weitere Beschränkung des Modells ist, dass alle Elektronen, sobald sie das Zielmaterial durchquert haben, als verloren angesehen werden. Experimente und Simulationen zeigen jedoch, dass ein Großteil der Elektronen elektrostatisch zurück in das Zielmaterial gezogen wird. Das steigert die Effizienz der Röntgenerzeugung und erhöht nach Kha12 die optimale Elektronentemperatur für eine gegebene Foliendicke. [Gib09, Ril05, ESS02, Pre03, Kha12].

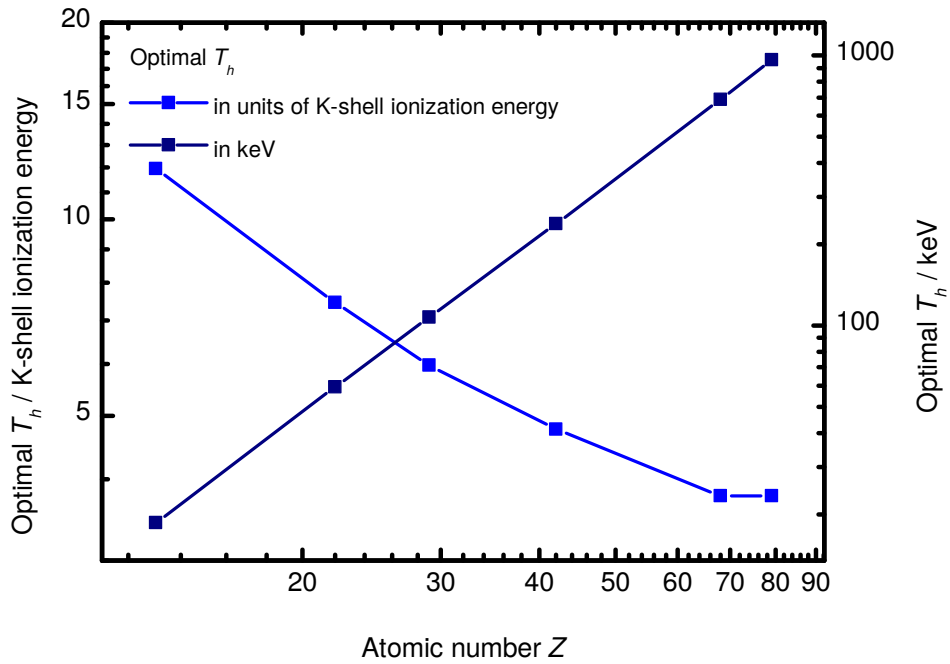


Abbildung 2.10: Optimale Elektronenenergie in Abhängigkeit der Ordnungszahl des Zielmaterials. Der Graph zeigt, dass das optimale Verhältnis von Elektronentemperatur T_h zur der K-Schalen-Ionisierungsenergie E_K mit steigender Ordnungszahl exponentiell abnimmt, während der absolute Wert exponentiell zunimmt. Für Kupfer liegt das Optimum bei $T_h \approx 6E_K = 54$ keV. (Daten entnommen aus Sal02.)

Zuletzt bleibt noch das auf Seite 20 bereits erwähnte Problem, dass sich die in Ausdruck 2.51 für die Effizienz verwendeten Parameter auf Festkörper und nicht auf Flüssigkeiten oder Plasmen beziehen und damit der Einfluss eines sich ändernden Aggregatzustands bei hohen Intensitäten nicht berücksichtigt wird.

Die wichtigsten Folgerungen dieses Modells für Planung und Betrieb einer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle lauten: Es existiert eine optimale Elektronentemperatur T_h und eine optimale Zielmaterialdicke. Letztere ist etwas kleiner als die mittlere freie Weglänge der Elektronen, die in Kupfer beispielsweise $22,3 \mu\text{m}$ beträgt. Die optimale Elektronentemperatur (bei konstanter Laserimpulsenergie) liegt bei Kupfer bei $T_h = 54 \text{ keV} \approx 6 E_K$.

3 Aufbau und Methoden

Die lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle am Lehrstuhl für BioMolekulare Optik soll speziell Fragestellungen über molekulare Kristalle adressieren. Damit unterscheidet sie sich in ihrer Konzeption von Plasma-Röntgenquellen anderer Gruppen, die sich vor allem für die Untersuchung photostabilerer Proben eignen.

Bei den geplanten Experimenten bestimmt die Anzahl der Anregvorgänge im Wesentlichen die Lebensdauer der zu untersuchenden Moleküle. Um ein möglichst großes Signal aus jeder Probe zu erhalten, ist die Anlage daher so ausgelegt, dass möglichst viele Röntgenphotonen pro Anregvorgang die Probe erreichen. Dafür hat das Lasersystem sehr hohe Impulsenergien, die an die Grenze dessen gehen, was im Rahmen von Optik-Laboren, deren Infrastruktur nicht speziell für den Betrieb von Hochenergie-Lasern entworfen ist, betreibbar ist.

Die folgenden Abschnitte beschreiben erst das Lasersystem der Plasma-Röntgenquelle und anschließend die weiteren Aufbauten, die zusätzlich zum Lasersystem zur Röntgenerzeugung eingesetzt werden. Danach werden Methoden zur Charakterisierung der Röntgenerzeugung beschrieben, die dann in Abschnitt 4 zur Anwendung kommen.

3.1 Lasersystem

Das Lasersystem, das am Lehrstuhl für BioMolekulare Optik für die lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle verwendet wird, ist vom Typ Centaurus X der Firma AMPLITUDE TECHNOLOGIES. Es erzeugt ultrakurze Lichtimpulse (Dauer etwa 45 fs) mit einer Wellenlänge von etwa 800 nm und einer spektralen Breite von gut 20 nm. Es hat zwei Ausgänge, von denen einer Impulsenergien von typischerweise 160 mJ (bis 200 mJ) mit rechteckförmigen Bündelprofil liefert, der andere etwa 8 mJ bis 10 mJ mit gaußförmigen Profil. Es besteht aus einem passiv modengekoppelten Titan-Saphir-Oszillator, dessen Impulse nach dem Prinzip der CPA¹ [SM85] verstärkt werden.

Das Lasersystem ist schematisch in Abbildung 3.1 skizziert. Ein Oszillator (A) erzeugt zuerst ultrakurze, spektral breite Lichtimpulse. Diese werden dann in einem Strecker (B) wellenlängenabhängig verzögert. Das bewirkt eine effektive Verlängerung der Impulse, wodurch ihre Maximalleistung sinkt. So kann der Laserlichtimpuls verstärkt werden, ohne dass es Probleme durch nichtlineare Effekte gibt oder die eingesetzten Materialien aufgrund der hohen Intensitäten zerstört werden.

¹Verstärkung gestreckter Impulse, engl.: *chirped pulse amplification*

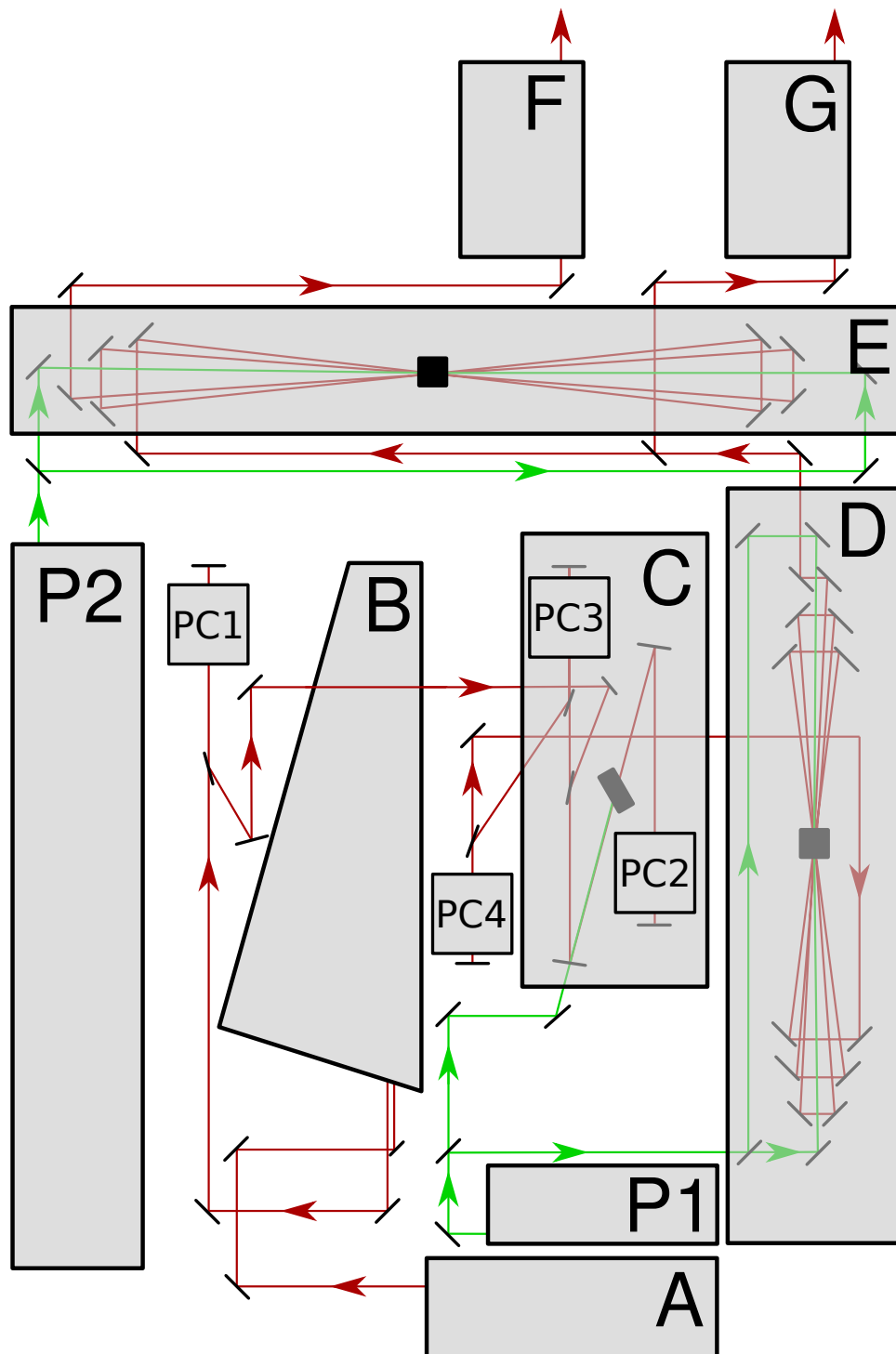


Abbildung 3.1: Schema des Lasersystems Centaurus X. Bestehend aus Oszillator (A), Strecker (B), regenerativem Verstärker (C), den Multipassverstärkern (D, E), den Kompressoren (F, G), den Pumplasern (P1, P2). Ebenfalls eingezeichnet sind die Pockelszellen (PC1-4).

Der Centaurus X besitzt drei Verstärkerstufen, einen regenerativen Verstärker (C) und zwei Multipassverstärker (D, E). Nach dem ersten Multipassverstärker (D) wird der Impuls aufgeteilt. Ein Teil gelangt weiter in den zweiten Multipassverstärker (E), der Rest wird nicht weiter verstärkt. Abschließend werden die Impulse in zwei getrennten Kompressoren (F, G) zeitlich komprimiert. Das geschieht wieder mittels einer wellenlängenabhängiger Laufzeit, womit die im Strecker erzeugten Verzögerungen zwischen den einzelnen Wellenlängen wieder aufgehoben werden. Der voll verstärkte Impuls und der vorher abgezweigte Teil haben jeweils ihren eigenen Kompressor, der entsprechend der jeweiligen Impulseigenschaften optimiert werden kann. Auf die einzelnen eben beschriebenen Komponenten wird im Folgenden detaillierter eingegangen.

3.1.1 Oszillator

Der Oszillator Synergy 20 ist (Bereich A in Abbildung 3.1) ein mittels Kerr-Linsen-Modenkopplung passiv modengekoppelter Titan-Saphir-Oszillator der Firma FEMTO-LASERS. Ein diodengepumpter Festkörperlaser (OPUS 2W von QUANTUM LASER) mit 532 nm Wellenlänge im Dauerstrichmodus erzeugt im Titan-Saphir-Kristall die nötige Besetzungsinversion. Der Oszillator liefert Impulse bei einer Zentralwellenlänge von etwa 790 nm bis 795 nm mit einer spektralen Breite von ca. 40 nm. Die Ausgangsleistung liegt bei rund 200 mW. Bei der Repetitionsrate von 75 MHz entspricht das einer Impulsenergie von 2,7 nJ. Die Impulsdauer liegt laut Hersteller unter 20 fs.

3.1.2 Strecker

Die Erzeugung hochenergetischer Impulse von nur wenigen zehn Femtosekunden Dauer stellt hohe Ansprüche an ein CPA-System. Spektrale Bandbreite, Aberrationen und nicht korrigierbare Dispersion limitieren die Impulslängen und den Impulskontrast des Systems [Che96]. Gerade Letzterer spielt bei lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen eine große Rolle, da Vorimpulse die Effizienz der Röntgenerzeugung stark beeinflussen [Lu09].

Der Strecker des Centaurus-X-Lasersystems besteht aus einem reflektivem Öffner-Triplet [Öff71]. Der Aufbau einer solchen Abbildung ist im Bereich B in Abbildung 3.1 skizziert. Eine genauere Beschreibung ist in Che96 zu finden. Diese Geometrie verbindet einen hohen Streckungsfaktor ($\sim 10\,000$) mit einer kompakten Bauweise und einer hohen spektralen Bandbreite bei gleichzeitig geringen Aberrationen. Sie ist frei von chromatischen Aberrationen, da sie ausschließlich reflektive optische Elemente enthält.

Der symmetrische Aufbau verhindert darüber hinaus alle Abbildungsfehler, die durch Asymmetrien im optischen System erzeugt werden würden. Damit verbleiben an relevanten Abbildungsfehlern lediglich sphärische Aberration und Astigmatismus, welche beide durch die konzentrisch angeordneten sphärischen Spiegel minimiert werden. Der Strecker hat dadurch so geringe Aberrationen, dass die Impulsdauer effektiv durch die spektrale Bandbreite des CPA-Systems bestimmt wird. [Che96]

3.1.3 Regenerativer Verstärker

Vor den Verstärkern verringert eine Pockelszelle (PC1 in Abb. 3.1) in Kombination mit einer $\lambda/2$ -Platte und einem Polarisator die Repetitionsrate auf 10 Hz. Der regenerative Verstärker erhöht dann die Energie der selektierten Oszillatorimpulse auf bis zu 300 μJ pro Impuls – das entspricht einer Verstärkung um einen Faktor von etwa 10^5 .

Er besteht aus einem optischen Resonator mit einem Titan-Saphir-Kristall als Verstärkermmedium. Seine typische z-Form zeigt Bereich C in Abbildung 3.1. Die Besetzungsinversion im Kristall stellen Impulse mit einer Energie von 10 mJ bei 532 nm Wellenlänge her. Sie werden durch einen blitzlampengepumpten Nd:YAG-Laser (CFR200 von QUANTTEL, Impulsenergie 120 mJ, Impulsdauer 8 ns, Repetitionsrate 10 Hz) bereit gestellt (P1 in Abb. 3.1).

Eine zweite Pockelszelle (PC2) koppelt den Impuls in den Resonator des Verstärkers ein, eine dritte (PC3) koppelt ihn, je nach Justage nach etwa zwölf Kristalldurchgängen, wieder aus. Eine vierte Pockelszelle (PC4) im Anschluss an den regenerativen Verstärker unterdrückt Vor- und Nachimpulse und erhöht so den Impulscontrast des Lasersystems.

3.1.4 Multipassverstärker

An den regenerativen Verstärker schließen sich zwei Multipassverstärker an (Bereiche D und E in Abbildung 3.1). Der erste verstärkt die Impulse zunächst auf 25 mJ, der zweite dann weiter auf 250 mJ. Ihre Verstärkungsfaktoren sind mit größenordnungsmäßig 10^2 bzw. 10^1 deutlich niedriger als die des regenerativen Verstärkers. Trotzdem müssen hier Multipassverstärker eingesetzt werden, da die Impulsenergien zu hoch für den Einsatz der im regenerativen Verstärker benötigten Pockelszellen sind. Außerdem sind sie deutlich einfacher zu justieren und benötigen keinerlei Elektronik.

Der erste Multipassverstärker wird mit 90 mJ der Impulsenergie des CFR200 gepumpt, dessen Impulse auch den regenerativen Verstärker pumpen (siehe vorheriger Abschnitt). Nach diesem ersten Multipassverstärker wird der Impuls aufgeteilt. Etwa 10 mJ werden weiter verstärkt, der Rest läuft direkt in den Kompressor.

Den zweiten Multipassverstärker pumpt der frequenzverdoppelte Nd:YAG-Laser ProPulse von AMPLITUDE TECHNOLOGIES, der aus einem instabilen Resonator und einem Verstärker besteht (beide blitzlampengepumpt) und 1 J Impulsenergie bei einer Wellenlänge von 532 nm und einer Impulsdauer von 7 ns mit 10 Hz liefert (P2 in Abb. 3.1). Er besitzt ein rechteckförmiges Intensitätsprofil. Da die Verstärkung in Sättigung läuft, prägt sie dem bis dahin gaußförmigen Intensitätsprofil des Laserimpulses aus dem Oszillator das rechteckige Profil des ProPulse auf. Abbildung 3.2 zeigt das Intensitätsprofil der Laserimpulse vor und nach dem zweiten Multipassverstärker.

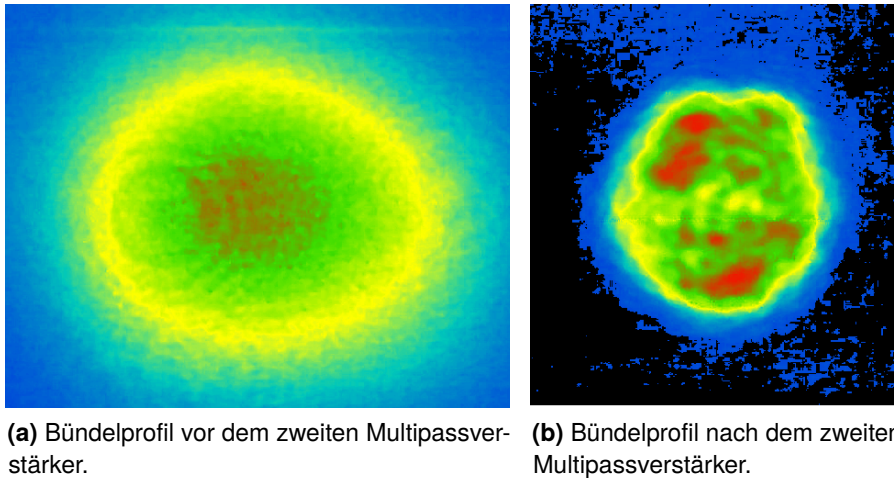


Abbildung 3.2: Bündelprofile vor und nach dem zweiten Multipassverstärker. Das vorher gaußförmige Bündelprofil ist nach dem zweiten Multipassverstärker rechteckförmig. Die Beugungsringe links der Mitte in Bild (a) sind ein Artefakt der Kameraoptik.

3.1.5 Kompressoren

Das Lasersystem hat zwei getrennte Kompressoren. Einen für den niederenergetischen (LE-Kompressor) und einen für den hochenergetischen Ausgang (HE-Kompressor) des Systems (Bereiche F bzw. G in Abbildung 3.1). Beide haben die gleiche grundlegende Geometrie, der HE-Kompressor ist aber für ein größeres Strahlprofil ausgelegt (Durchmesser etwa 4 cm). Die Effizienz der Kompressoren liegt bei etwa 70 %.

Sie bestehen aus zwei parallel angeordneten Gittern und einem Retroreflektor. Der Laserimpuls trifft so zwei Mal auf jedes Gitter. Der Komprimierung lässt sich mit einer Mikrometerschraube optimieren, die den Abstand der Gitter entlang ihrer Verbindungslinie ändert. Diese Anordnung ist detailliert in OR94 beschrieben.

3.2 Erzeugung ultrakurzer Röntgenimpulse

Dieser Abschnitt beschreibt die Aufbauten und Komponenten, die zusätzlich zum Lasersystem für eine lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle benötigt werden. Eine schematische Zeichnung der Röntgenerzeugung zeigt Abbildung 3.3. Eine Linse fokussiert die Laserimpulse auf ein Kupferband, wo sie Röntgenstrahlung erzeugen. Damit die fokussierten Laserimpulse nicht die Luft ionisieren und so ihre Energie verlieren oder reflektiert werden, bevor sie das Kupferband erreichen, befindet sich das Kupferband in einer Vakuumkammer. Die Laserimpulse gelangen durch ein Eintrittsfenster aus Quarzglas in die Vakuumkammer, die Röntgenstrahlung verlässt sie durch eine mit

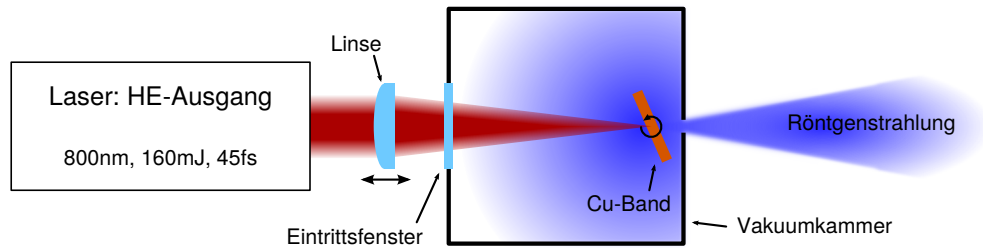


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Röntgenerzeugung. Eine Linse fokussiert die Laserlichtimpulse auf ein Kupferband in einer Vakuummkammer. Die Linse ist entlang der Strahlachse verschiebbar, das Kupferband lässt sich um den Auftreffpunkt des Bündels auf dem Kupferband rotieren, um den Winkel zwischen Strahlachse und Kupferband einstellen zu können. Die erzeugte Röntgenstrahlung gelangt durch eine Bohrung in der Vakuummkammer, die mit dünner Kunststoffolie abgedichtet ist, nach außen.

Kunststoffolie abgedichtete Bohrung. Die folgenden Abschnitte beschreiben die einzelnen Komponenten der Röntgenerzeugung.

3.2.1 Fokussierung

Eine Bestform-Linse fokussiert das Laserlicht auf das Kupferband. Alternativ ließe sich hier auch ein Paraboloid einsetzen, womit man die durch die Linse verursachte Impulsdauerverlängerung vermeiden könnte (siehe unten). Für große Bündeldurchmesser wäre wegen der limitierten Fertigungsqualität von kosteneffektiven Paraboloiden allerdings mit starken Aberrationen zu rechnen. Außerdem wäre der Justageaufwand deutlich höher. Die hier verwendete Linse hat eine Brennweite von 30 cm und einen Durchmesser von 75 mm. Die Randdicke der Linse beträgt 3 mm, die Mittendicke etwa 8 mm. Sie hat beidseitig eine Antireflexbeschichtung für Licht mit einer Wellenlänge von 800 nm. Die Linse fokussiert das Lichtbündel auf einen Durchmesser (FWHM) von etwa 0,2 mm. Sie ist auf einem fernsteuerbaren Linearverschieber montiert, der sie entlang der Strahlachse verschieben kann. Die Fokussierung durch die Linse beeinflusst auch den zeitlichen Verlauf der Intensität im Fokus [Bor88, Bor89]. Ursache dafür ist die Materialdispersion von Linse und Vakuumfenster sowie der durch die Linse verursachte Gangunterschied zwischen verschiedenen Teilen des Lichtbündels.

Es lassen sich zwei Effekte unterscheiden. Zum einen ändert sich die Laufzeit zum Fokus in Abhängigkeit des Abstands zur Achse. Die achsfernen Anteile des Bündels erreichen den Fokus vor den achsnahen. Dieser Laufzeitunterschied (PTD²) führt zu einer Verlängerung des Impulses in der Fokalebene. Zum anderen verlängert die Grup-

²engl.: *propagation time difference*

pengeschwindigkeitsdispersion (GVD³) den Impuls. Da die GVD von der Länge des Lichtwegs in der Linse bestimmt wird, ist auch dieser Effekt von der Achsferne abhängig.

Die aus der PTD resultierende Verzögerung $\Delta T(r)$ eines Strahls auf der optischen Achse gegenüber einem mit Abstand r zur optischen Achse lässt sich nach Bor88 in paraxialer Näherung folgendermaßen berechnen:

$$\Delta T(r) = \frac{r^2}{2cf(n-1)} \left(-\lambda \frac{dn}{d\lambda} \right) \quad (3.1)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge, f und n Brennweite und Brechungsindex der Linse und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Die Ableitung des Brechungsindex lässt sich aus den Sellmeier-Gleichungen mit den Werten aus Mal65 berechnen. Das Fenster zum Vakuumtopf, welches das fokussierte Bündel durchquert (siehe Abbildung 3.3) liefert in paraxialer Näherung keinen Beitrag zur PTD. Die Verzögerung eines Strahls auf der Bündelachse gegenüber einem Randstrahl ($r=2\text{ cm}$) ist demnach:

$$\Delta T_{\max}^{\text{PTD}} = 69 \text{ fs} \quad (3.2)$$

Die GVD hat ihr Maximum auf der Strahlachse und fällt mit zunehmender Achsferne ab. Die Impulsdauer τ nach einer Strecke L in Quarzglas lässt sich aus der ursprünglichen Impulsdauer τ_0 berechnen (siehe z. B. DR06 oder Ros08):

$$\tau(L) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{2 \ln 2 \lambda^3 L}{\pi c^2 \tau_0^2} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right)^2} \quad (3.3)$$

Beim hier beschriebenen Experiment beträgt die ursprüngliche Impulsdauer 45 fs, der Laserstrahl auf der Strahlachse durchläuft erst 8 mm Linse und dann 5 mm Fenster. Daraus erhält man eine Obergrenze für die durch GVD verlängerte Impulsdauer:

$$\tau_{\max}^{\text{GVD}} = 53 \text{ fs} \quad (3.4)$$

Das entspricht einer Verlängerung der Impulsdauer um 8 fs, was deutlich kleiner ist als $\Delta T_{\max}^{\text{PTD}}$. Also verändert vor allem die PTD die Impulsdauer im Fokus.

Die verlängerte Impulsdauer τ_{PTD} , die durch die Verzögerung $\Delta T_{\max}^{\text{PTD}}$ zustande kommt, ergibt sich im Prinzip aus folgenden Überlegungen: Allgemein lässt sich der zeitlich Verlauf der Leistung $P(t)$ eines zeitlich gaußförmigen Impuls darstellen als

$$P(t) = P_0 \exp \left(-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right). \quad (3.5)$$

Nun kann man das Intensitätsprofil vor der Linse (wenn es wie hier radialsymmetrisch ist) in infinitesimale Kreisringe $2\pi r dr$ aufteilen, von denen jedes eine Maximalintensität $I_0(r)$ und eine Laufzeitverzögerung $\Delta T(r)$ hat. Jeder Kreisring trägt dann mit

³engl.: *group velocity dispersion*

$P_0(r) = I_0(r) \cdot 2\pi r dr$ zur Gesamtleistung des durch die PTD verformten Impulses bei. Einen Ausdruck für den zeitlichen Verlauf der Gesamtleistung $P_{\text{PTD}}(t)$ des verformten Impulses erhält man, indem man über alle Kreisringe integriert und dabei deren jeweilige Laufzeitverzögerung $\Delta T(r)$ berücksichtigt:

$$P_{\text{PTD}}(t) = \int_0^\infty I_0(r) 2\pi r \exp\left(-4 \ln 2 \left(\frac{t - \Delta T(r)}{\tau}\right)^2\right) dr \quad (3.6)$$

Daraus lässt sich jedoch kein einfacher, allgemein gültiger Ausdruck für die durch die PTD verlängerte Impulsdauer τ_{PTD} herleiten.

Als Schätzung für die Obergrenze der Impulsdauer insgesamt τ_{max} kann man aber die Summe aus der durch die GVD verlängerten Impulsdauer und der PTD angeben. Für $T_{\text{max}}^{\text{PTD}} \gg \tau_0$ stellt das eine gute Näherung dar. Für die hier vorliegende Kombination aus GVD und PTD ergibt sich:

$$\tau_{\text{max}} = \tau_{\text{max}}^{\text{GVD}} + \Delta T_{\text{max}}^{\text{PTD}} = 122 \text{ fs} \quad (3.7)$$

Die GVD lässt sich größtenteils kompensieren, indem man den Abstand der Gitter im Kompressor und damit dessen Gruppendispersion ändert. Die PTD ließe sich nur durch den Einsatz reflektiver Optiken vermeiden. Nach der Fokalebene nimmt der Einfluss der PTD zwar wieder ab, bis in einem Abstand L nach dem Fokus $\Delta T = 0$ wird. Dieser Abstand ergibt sich aus rein geometrischen Überlegungen nach Bor88 zu

$$L = \frac{f}{n-1} \left(-\lambda \frac{dn}{d\lambda}\right) = 9,2 \text{ mm} . \quad (3.8)$$

Allerdings ist dort der Bündeldurchmesser zu groß und damit die Intensität zu klein, um noch effizient harte Röntgenstrahlung zu generieren. Dieser Effekt könnte aber mit dafür verantwortlich sein, dass, wenn das Kuperband aus der Fokalebene bewegt wird, sich die Effizienz der Röntgenerzeugung unterschiedlich stark ändert, je nachdem, ob der Fokus vor oder hinter dem Kupferband liegt (siehe Abschnitt 4.3).

Insgesamt kann man in der Nähe der Fokalebene bei optimiertem Kompressor von einer Impulsdauer von weniger als 0,2 ps ausgehen.

Für die Röntgenerzeugung ist neben der Impulsdauer und damit der Maximalintensität vor allem die Anstiegszeit des Impulses ein wichtiger Parameter, da sie die Eigenschaften des Plasmas maßgeblich bestimmt, mit dem der Hauptteil des Impulses wechselwirkt. Die Rechnungen von Kempe et al. [Kem92] lassen darauf schließen, dass sich die Anstiegszeit durch die PTD nicht so stark ändert wie die Impulsdauer. Vielmehr verlieren die Impulse in der Fokalebene zeitlich ihre Gaußform und bekommen ein ausgedehntes Plateau. Abbildung 3.4 versucht diesen Effekt zu veranschaulichen. Dabei wurde vernachlässigt, dass die Strahlbündelanteile je nach Achsferne unterschiedlich stark zur Intensität beitragen, wie aus Gleichung 3.6 hervorgeht. Berücksichtigt man dies, steigt die Impulsintensität anfangs schnell auf hohe Werte und fällt dann über das Plateau hinweg ab [Kem92].

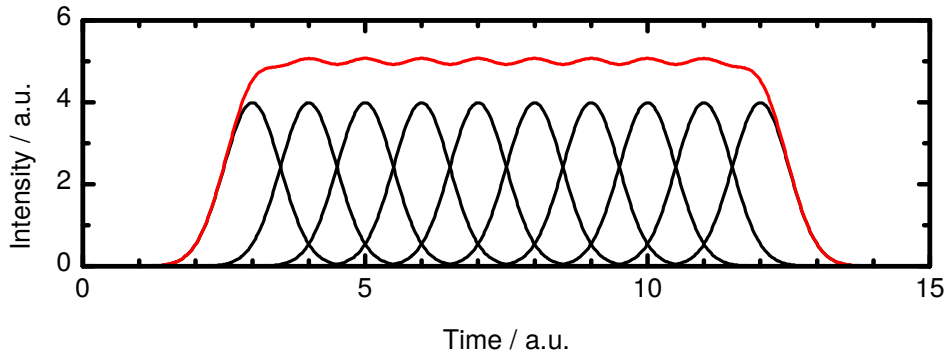


Abbildung 3.4: Einfluss der PTD auf die zeitliche Impulsform. Die Impulsanteile von unterschiedlichen Achsabständen (schwarz) kombinieren sich in der Fokalebene zu einer neuen Impulsform (rot) mit ausgedehntem Plateau. Die PTD ist hier übertrieben groß gewählt (die ursprüngliche Impulsdauer verachtfacht sich) und für die verschiedenen Achsanteile wurde identische Intensität angenommen, um den Effekt besser zu veranschaulichen.

3.2.2 Laserlichtpropagation und B-Integral

Ein hochenergetischer ultrakurzer Laserimpuls ruft in Medien nichtlineare Effekte hervor. Diese ändern den Brechungsindex des Mediums in Abhängigkeit der Intensität des Laserimpulses. Dieser sogenannte *optische Kerr-Effekt* lässt sich in erster Näherung durch den Übergang vom ausschließlich wellenlängenabhängigen Brechungsindex $n(\lambda) = n_0(\lambda)$ zu einem zusätzlich intensitätsabhängigen Brechungsindex $n(\lambda, I)$ beschreiben (siehe z. B. ZZ11):

$$n(\lambda) \rightarrow n(\lambda, I) = n_0(\lambda) + n_2(\lambda) I \quad (3.9)$$

Den Koeffizienten n_2 nennt man den *nichtlinearen Brechungsindex*. Unterschiedliche Teile des Bündels erfahren so je nach lokaler Intensität unterschiedliche Brechungsindizes. Das führt unter anderem zu Effekten wie Selbstphasenmodulation, Kerr-Linsen-Effekt, spektraler Impulsverbreiterung oder dem Aufbrechen des Bündels. Eine Abschätzung für die Stärke dieser Effekte bietet das *B-Integral* (siehe z. B. Pas08):

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int n_2 I(z) dz \quad (3.10)$$

Es gibt die aufgrund der Nichtlinearität akkumulierte Phasenverschiebung über eine Strecke z entlang der Strahlachse in Wellenlängen an. Solange es nicht deutlich größer als eins ist, sind keine nicht-linearen Effekte bei der Propagation zu erwarten.

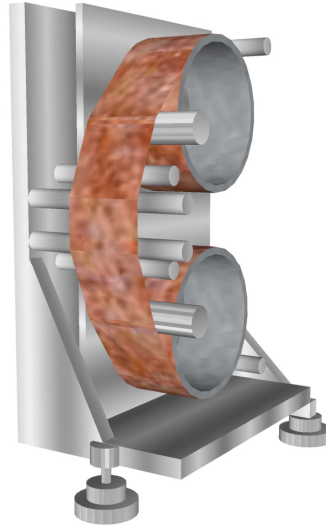


Abbildung 3.5: Das Bandlaufwerk. Es sorgt für einen kontinuierlichen Austausch des Zielmaterials (Kupfer) bei der Röntgenerzeugung. Seine Funktionsweise ist auf der nächsten Seite beschrieben.

Auf dem Weg vom Ausgang des Lasersystems bis zum Kupferband durchläuft das Laserlicht etwa 2 m Luft und 1,5 cm Quarzglas (siehe Abschnitt 3.2.1). Diese beiden Medien haben folgende nichtlineare Brechungsindizes [Nib97, Nib95]:

$$\begin{aligned} n_2^{\text{Luft}} &\approx 4 \cdot 10^{-19} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \\ n_2^{\text{Quarzglas}} &\approx 3 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \end{aligned} \quad (3.11)$$

Mit den oben gegebenen Parametern des hochenergetischen Impulses (160 mJ, 45 fs, 790 nm, Ø4 cm) ergeben sich damit für die beiden Medien B-Integrale von:

$$\begin{aligned} B(\text{Luft}) &= 1,6 \\ B(\text{Quarzglas}) &= 9 \end{aligned} \quad (3.12)$$

Trotz dieser relativ hohen Werte sind geometrische Auswirkungen dieser anfangs genannten nicht-linearen Effekte (z. B. Kerr-Linsen-Wirkung) im gegebenen Aufbau nicht zu beobachten. Der Grund hierfür ist, dass sich die Wellenfront wegen des großen Bündeldurchmessers und des Rechteckprofils nur schwach krümmt. Das B-Integral führt zu einer Laufzeitverzögerung um 10,6 Wellenlängen, die wegen den rechteckigen Profils über das gesamte Bündel konstant ist. Der Impuls wird dadurch um etwa 30 fs verzögert.

3.2.3 Bandlaufwerk

Für eine konstante Röntgenerzeugung muss jeder Laserimpuls auf unverbrauchtes Kupferband treffen, wobei sich dessen Position relativ zur Laserstrahlachse von Impuls

zu Impuls nicht ändern darf. Das soll das selbst entwickelte Bandlaufwerk gewährleisten, dass Abbildung 3.5 zeigt.

Es besteht aus zwei Einheiten: Eine am Boden fixierbare Trägereinheit hält eine in diese eingehängte Kassette. Die Trägereinheit ist um ihren vorderen Fuß rotierbar, welcher sich genau unter dem Punkt der Röntgenerzeugung befindet. So lässt sich der Einfallswinkel des Lasers einstellen, ohne das Kupferband aus der Fokalebene der Fokussierung zu drehen.

Zwei auf der Kassette montierte motorisierte Spulen nehmen das Kupferband auf. Es wird über vier Umlenkstifte von einer Spule zur anderen geführt. Diese Stifte sind aus gehärtetem Stahl gefertigt und an der Trägereinheit befestigt, um die Position des Kupferbands möglichst stabil zu halten. Zwischen den inneren Umlenkstiften liegt der Laserfokus. Ein Motor kann die Kassette gegenüber der Trägereinheit horizontal in der Ebene des Kupferbands verschieben.

Im Betrieb wird das Kupferband von einer Spule zur anderen gewickelt und jedes Mal beim Erreichen des Bandendes verschoben. Der Motor der abwickelnden Spule bremst das Kupferband dabei stetig und hält es so auf Spannung. Zwei Lichtschranken detektieren, wann das Kupferband von einer Spule komplett abgewickelt ist. Dazu ist es auf jeder Seite mit durchsichtigem Plastikband verlängert. Wird das Bandende erreicht, detektiert eine Lichtschranke den Wechsel von Kupfer- zu Plastikband und sendet ein Signal an die Steuerelektronik. Dies löst bei den Motoren der Spulen einen Drehrichtungswechsel aus und lässt den Motor der Innenkassette diese um etwa 1 mm verschieben. So wird das Kupferband Bahn für Bahn beschossen. Die eben beschriebene Ansteuerung läuft rein analog, um einen möglichst störsicheren und ausfallfreien Betrieb gewährleisten zu können. Sollte der Bandtransport nämlich ausfallen, würden die Laserimpulse das Kupferband perforieren und durch das Austrittsloch in der Vakuumkammer unkontrolliert nach außen gelangen, wo sie Komponenten beschädigen oder die Experimentatoren gefährden könnten. Der genaue Schaltplan und dessen Funktionsweise sowie die Teileliste sind im Anhang A.1 zu finden.

Das Kupferband läuft normalerweise mit einer Geschwindigkeit von etwa 4 mm/s. Je nach Länge des aufgewickelten Kupferbands (typischerweise 5 m bis 10 m) kann bei einer Breite des Bandes von 4 cm für etwa 5 bis 10 Stunden ohne Unterbrechung gemessen werden.

3.2.4 Kupferband

Das Kupferband hat eine Reinheit von über 99,9 %. Kupfer gibt es in unterschiedlichen Härtegraden. Möglichst hartes Kupfer hat sich in den Experimenten als am besten geeignet erwiesen, da es das Risiko verringert, dass das Band reißt. Die Dicke des Kupferbandes beeinflusst direkt die Röntgenausbeute und die Dauer der Impulse, wie bereits in Kapitel 2.2 beschrieben. Wenn nicht anders angemerkt, wurde in den Experimenten 20 µm dicke Bänder verwendet, die einen guten Kompromiss zwischen Ausbeute, Impulsdauer und Reißfestigkeit bieten.

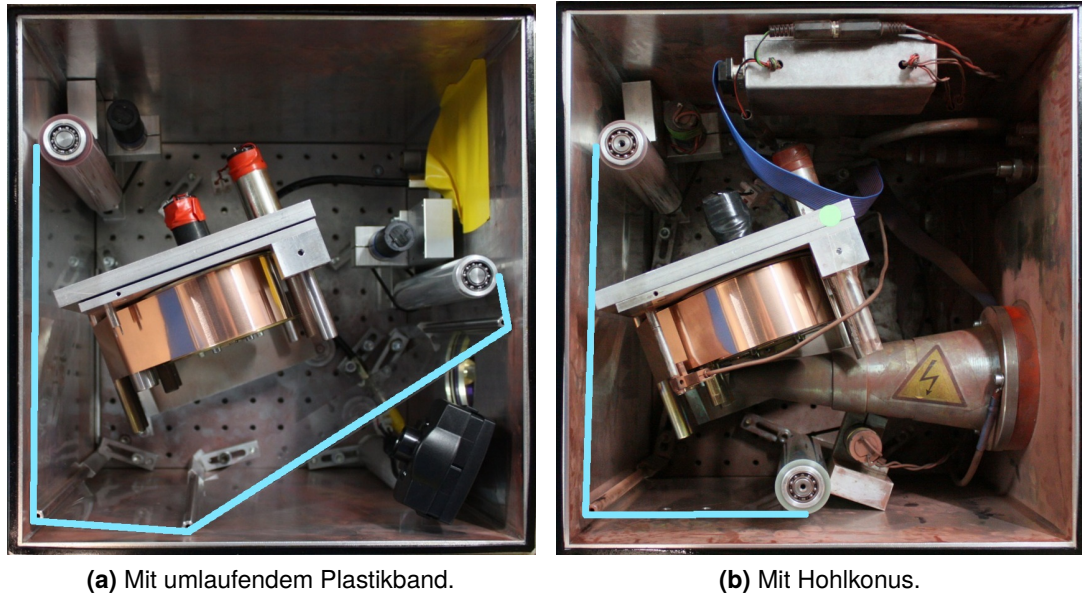


Abbildung 3.6: Bilder der Vakuumkammer mit unterschiedlichem Debris-Schutz vor dem Eintrittsfenster. Bild (a) zeigt den ursprünglichen Aufbau, in der das Plastikband Ein- und Austrittsfenster schützt. Bild (b) zeigt den deutlich langzeitstabileren Aufbau, in dem das Eintrittsfenster durch einen Hohlkonus geschützt wird. Das Laserlicht wird so nicht mehr durch das Plastikband beeinflusst.

3.2.5 Debris-Schutz

Bei der Röntgenerzeugung wird das Kupferband, an den Stellen, an denen es vom Laser getroffen wird, zerstört. Dies erzeugt beträchtliche Mengen an Debris, bestehend aus Kupferstaub und einzelnen -atomen und -atomclustern, was im Betrieb zu Problemen führen kann. So wächst beispielsweise an der Wand der Vakuumkammer ein Kupferkegel, der das Austrittsloch für die Röntgenstrahlung überdecken kann. Er entsteht, da bei der Röntgenerzeugung das Kupfer vorzugsweise senkrecht zum Band herausgeschleudert wird. Darüber hinaus scheidet sich auf allen Gegenständen im Vakuumtopf ein feiner Kupferstaub ab. Das führt dazu, dass die intensiven Lichtimpulse die Antireflexbeschichtung des Eintrittsfensters innerhalb weniger Betriebsstunden zerstören, wenn das Fenster nicht geschützt oder regelmäßig gereinigt wird.

Deswegen war anfangs ein Plastikband eingebaut (wie auch bei anderen Röntgenquellen in der Literatur beschrieben), das erst vor dem Eintrittsfenster im Brewsterwinkel und anschließend vor dem Austrittsfenster entlang läuft (siehe Abbildung 3.6a). Die Versuche aus Abschnitt 4.4 zeigten jedoch, dass das Plastikband vor dem Eintrittsfenster den Laserfokus beeinflusst, wodurch starke Schwankungen auf der Zeitskala einiger zehn Sekunden in der Röntgenintensität auslöst werden. Deswegen schützt das Plastikband im aktuellen Aufbau nur noch das Austrittsfenster. Das Eintrittsfenster wird stattdessen durch einen Hohlkonus aus Aluminium geschützt (siehe Abbildung 3.6b). Er umschließt

das fokussierte Laserlicht bis kurz vor dem Kupferband, wo er eine Austrittsöffnung von 10 mm Durchmesser hat. Somit kann Kupfer nur durch diese kleine Öffnung zum Fenster gelangen. Die Fläche dieser Öffnung ist gegenüber der Oberfläche des Fensters deutlich kleiner, so dass der Kupfereintrag so weit verringert wird, dass es genügt, das Fenster bei jedem Kupferbandwechsel zu reinigen, damit es eine Lebensdauer von bis zu hundert Betriebsstunden erreicht.

3.3 Methoden zur Charakterisierung ultrakurzer Röntgenimpulse

Dieser Abschnitt beschreibt Material und Methoden, die verwendet wurden, um verschiedene Parameter der lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle zu quantifizieren. Dabei wird auf prinzipielle und technische Aspekte der Methoden eingegangen, sowie ihre Genauigkeit abgeschätzt.

3.3.1 Detektoren

Als Detektoren wurden Si-pin Dioden und eine Ionisationskammer für die Einzelimpulserfassung und für quantitative Messungen der Röntgenimpulsenergie eingesetzt sowie eine CCD-Kamera um ortsausgelöste Informationen zu erhalten.

Si-pin-Dioden und Ionisationskammer In Si-pin-Photodioden werden von der Röntgenstrahlung in der Verarmungsschicht Elektron-Loch-Paare erzeugt, die dann über die Elektroden abfließen und so einen Stromfluss erzeugen. Haben die Röntgenphotonen 8 keV Energie, so wird in Silizium durchschnittlich pro $E_{\text{eh}} = 3,6 \text{ eV}$ dieser Energie ein Elektron-Loch-Paar erzeugt. [Fra94]. Dieser Wert für E_{eh} ist deutlich größer als die Bandlücke in Silizium mit 1,12 eV, da hier Energieverluste wie Interbandanregungen berücksichtigt sind. Pin-Dioden haben im Gegensatz zu normalen pn-Dioden zwischen den dotierten p- und n-Schichten eine nur schwach dotierte Zwischenschicht. Das vergrößert die Verarmungsschicht der Diode und erhöht dadurch ihre Detektionseffizienz für Röntgenstrahlung.

Ab einigen 10 keV ist auch bei pin-Dioden die Verarmungsschicht zu dünn, um noch effektiv Röntgenstrahlung detektieren zu können. Für niederenergetischere Röntgenstrahlung begrenzt dagegen die inaktive Totschicht, die von der Röntgenstrahlung durchdrungen werden muss, die Effizienz von Dioden: Unterhalb einiger keV wird fast die gesamte Röntgenstrahlung von der wenige Mikrometer dicken Totschicht absorbiert.

Die hier verwendeten Si-pin-Dioden (HAMAMATSU, S3590-08) sind mit einer Spannung von 100 V vorgespannt und über einen Kondensator an eine Stromverstärkerschaltung (nach SWZ97) gekoppelt. Die entstehenden Stromimpulse werden mit einem Oszilloskop (TEKTRONIX, Modell DPO 4054B) detektiert, in dem sie über einen 50 Ω -Abschlusswiderstand einen Spannungsimpuls hervorrufen. Das Oszilloskop integriert

über jeden Spannungsimpuls und kann einen Mittelwert über mehrere solcher Integrale bilden. Ihr Flächeninhalt ist proportional zur Anzahl der Elektron-Loch-Paare, die in der Diode erzeugt wurden.

Alternativ zum integrierenden Oszilloskop kann auch ein Gated Integrator (STANFORD RESEARCH SYSTEMS, Modell SR250) und ein Analog-Digital-Wandler (NATIONAL INSTRUMENTS, Modell PCI-MIO-16E-4) zur Detektion des Diodenstroms eingesetzt werden. Auch hier werden die Stromimpulse durch einen $50\,\Omega$ -Abschlusswiderstand in Spannungsimpulse umgewandelt. Der Gated Integrator gibt dann eine zur Impulsenergie und zur inversen Gatedauer proportionale Gleichspannung aus, die der Analog-Digital-Wandler erfasst und die dann digital abgespeichert werden kann.

Eine Ionisationskammer (ADC, MIC-205) kann analog zu den Photodioden eingesetzt werden. Die Röntgenstrahlung erzeugt zwischen den Kondensatorplatten Elektronen und Ionen, die durch die Platten abgesaugt werden und so zu einem Stromfluss führen. Bei einer luftgefüllten Ionisationskammer wird im Mittel pro $34,4\,\text{eV}$ der Photonenenergie ein Elektron-Ion-Paar erzeugt [Tho09]. Die Länge der Ionisationskammer beträgt etwa $2\,\text{cm}$. Ist sie mit Luft unter atmosphärischen Bedingungen gefüllt, werden Röntgenphotonen mit $8\,\text{keV}$ Energie auf dieser Länge zu etwa $2,2\,\%$ absorbiert [HGD93]. Verglichen mit den Si-pin-Dioden, ist das zu erwartende Signal daher bei gleicher Verstärkung um den Faktor $4,1 \cdot 10^2$ schwächer. Eintritts- und Austrittsfenster sind aus Kapton und etwa $0,1\,\text{mm}$ dick. Insgesamt hat die Ionisationskammer eine gemessene Transmission von $75\,\%$ bei $8\,\text{keV}$. Dadurch, dass Ionisationskammern nur einen geringen Teil der Röntgenstrahlung absorbieren, können sie für nicht-destruktive Referenzmessungen im Strahlengang eingesetzt werden.

Verstärkt wird das Signal der Ionisationskammer durch einen Stromverstärker der Firma FEMTO (Modell DHPKA-100). Die Verstärkung beträgt $1 \cdot 10^2\,\text{V/A}$ bis $1 \cdot 10^8\,\text{V/A}$. Bei den höchsten Verstärkungsstufen ist das Rauschen allerdings bereits sehr stark. Die Detektion der verstärkten Impulse erfolgt wieder entweder durch das Oszilloskop oder den Gated Integrator mit Analog-Digital-Wandler.

CCD-Kamera Die eingesetzte CCD-Kamera ist das Modell SCX-1300 von PRINCETON INSTRUMENTS. Der CCD-Sensor hat 1340×1300 Pixel, eine Pixelgröße von $20\,\mu\text{m} \times 20\,\mu\text{m}$ und ist $26,8\,\text{mm}$ breit und $26,0\,\text{mm}$ hoch. Am Sensor ist ein sogenannter Taper angebracht, der ihn mit einem Phosphorschirm verbindet. Ein Taper ist ein Bündel aus Glasfasern, die sich in eine Richtung verjüngen. Der Phosphor erhöht die Detektionseffizienz für Photonen jenseits der $10\,\text{keV}$, indem er Röntgenphotonen absorbiert und im grünen Spektralbereich fluoresziert. Außerdem vergrößert er zusammen mit dem Taper die Detektionsfläche (und die Pixelgröße) um den Faktor $1,5$. Der CCD-Sensor wird durch ein wassergekühltes Peltier-Element auf $-35\,^\circ\text{C}$ gekühlt. Die Kamera hat eine Dynamik von 16 Bit, ein Ausleserauschen von typischerweise $2\,e^-$ und einen Dunkelstrom von weniger als $0,5\,e^-/\text{s/pixel}$.

3.3.2 Spektrum der Röntgenstrahlung

Die Methoden zum Messen eines Röntgenspektrums kann man grundsätzlich in zwei Kategorien aufteilen. *Energiedispersive* Methoden erfassen Anzahl und Energie der einzeln auf den Detektor treffenden Photonen. *Wellenlängendispersive* Methoden selektieren erst eine bestimmte Wellenlänge und messen dann nur die Gesamtenergie der auf den Detektor treffenden Photonen, woraus sich mittels der vorselektierten Wellenlänge die Anzahl der Photonen mit dieser Wellenlänge berechnen lässt.

Die meisten handelsüblichen Detektoren sind energiedispersiv, da sie bei kontinuierlich emittierter Röntgenstrahlung schnell und technisch einfach ein Spektrum über einen großen Energiebereich liefern können. Sie messen die Energie der innerhalb eines Zeitfensters (typischerweise Mikrosekunden) eintreffenden Photonen. Der Nachweis muss deswegen so ausgelegt werden, dass der Detektor von der zu messenden Röntgenquelle im Schnitt weniger als ein Photon pro Zeitfenster erfasst. Die gemessene Gesamtenergie pro Zeitfenster kann dadurch einem einzelnen Photon zugeordnet und so die spektrale Information erhalten werden.

Diese Methode ist jedoch nicht geeignet für Röntgenquellen mit ultrakurzen Impulsen und niedriger Wiederholrate. Die pro Impuls emittierten Röntgenphotonen gelangen alle in *ein* Zeitfenster. Man muss die Impulse daher so stark abschwächen, dass pro Impuls nur ein Photon den Detektor erreicht. Bei einer Wiederholrate von 10 Hz verlängert das die Aufnahmezeit für Spektren jedoch um einen Faktor von etwa 10^5 gegenüber kontinuierlich emittierenden Quellen.

Deswegen wurde das Spektrum in der vorliegenden Arbeit mit einer wellenlängendispersiven Methode gemessen. Den Aufbau dazu zeigt Abbildung 3.7. Ein einkristalliner Siliziumwafer, dessen Oberfläche parallel zur (1 1 1)-Ebene liegt, wird möglichst nah an der Röntgenquelle positioniert, so dass er einen möglichst großen Raumwinkel der emittierten Strahlung auffängt. Je nach Auftreffpunkt auf dem Wafer erfüllt eine andere Wellenlänge λ die Bragg-Bedingung (siehe z. B. War90):

$$n \lambda = 2d \sin \theta \quad (3.13)$$

Dabei ist d der Abstand der Kristallebenen, n die Ordnung des Reflexes und θ der Winkel zwischen dem Wellenvektor der einfallenden Röntgenstrahlung und den Kristallebenen. Eine CCD-Kamera (siehe Abschnitt 3.3.1) detektiert die abgelenkte Strahlung, wobei jede Wellenlänge auf eine andere Stelle der CCD trifft. Eine Wellenlängeneichung lässt sich aus der Lage der charakteristischen Linien gewinnen.

Nachteil dieser Methode ist, dass sich prinzipiell die Spektren verschiedener Ordnungen überlappen können.

Energiebereich Der erfasste Winkel- und damit Energiebereich kann entweder durch die Größe des Austrittsfensters der Vakuumkammer, die Breite des Siliziumwafers oder die Breite der CCD begrenzt sein. Ein typischer Wert für den erfassbaren Winkelbereich des Gesamtsystems ist etwa 10° . Betrachtet man den Spektralbereich um die

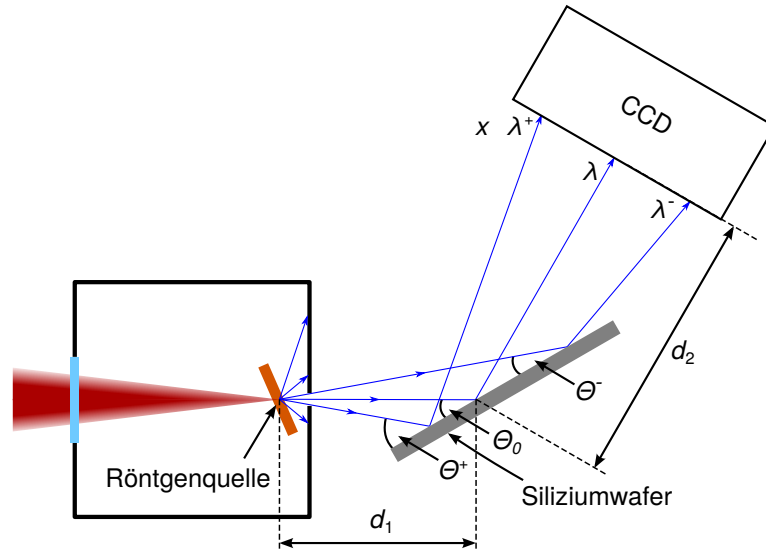


Abbildung 3.7: Aufbau zur Messung des Röntgenspektrums. Ein Siliziumwafer lenkt die Röntgenstrahlung durch Bragg-Reflexion unter verschiedenen Winkeln auf eine CCD-Kamera. Die Abstände d_1 und d_2 beeinflussen die erfassbare Breite und die Auflösung des Spektrums.

K_α -Linie von Kupfer ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$) für die $\{111\}$ -Ebenschar von Silizium ($d = 3,14 \text{ \AA}$, $\theta_0(K_\alpha) = 14,224^\circ$), ergibt sich dafür $\lambda^+ = 2,1 \text{ \AA}$ und $\lambda^- = 1,0 \text{ \AA}$ und damit ein Energiebereich von 6,0 keV bis 12 keV. Das erwartete Bremsstrahlungskontinuum geht zwar weit über diesen Bereich hinaus, aber trotzdem lässt sich aus dem Verhältnis der Intensität in den charakteristischen Linien zu der im erfassten Kontinuum immer noch ein Maß dafür ableiten, wie sich das Verhältnis dieser Intensitäten bei Parametervariation der Röntgenerzeugung ändert. Photonen Energien unterhalb weniger keV werden außerdem bereits von einigen Zentimetern Luft absorbiert und spielen daher im gegebenen Experiment keine Rolle.

Ein größerer Energiebereich lässt sich abbilden, indem man zwei Spektren erfasst und die Winkel dabei so einstellt, dass die charakteristischen K-Linien einmal auf der hoch- und einmal auf der niederenergetischen Seite des Spektrums gerade noch abgebildet werden. Um Langzeitschwankungen in der Röntgenintensität auszugleichen, kann bei den verschiedenen Messungen dann auf die Intensität der charakteristischen Linien normiert werden. Für oben genanntes Beispiel lässt sich dann das Spektrum von $\lambda^+ = 2,6 \text{ \AA}$ und $\lambda^- = 0,46 \text{ \AA}$ beziehungsweise 4,8 keV bis 18 keV abbilden.

Energieauflösung Die Energieauflösung dieser Methoden wird ebenfalls durch verschiedene Aspekte begrenzt. Zum einen ist das die Rockingkurve des Siliziumwafers, die den Akzeptanzöffnungswinkel eines Reflexes für eine gegebene Wellenlänge beziehungsweise Energie beschreibt. Für Halbleiterkristalle ist die Rockingkurvenbreite $\Delta\theta_{rc}$

typischerweise $\leq 0,1^\circ$. Zum anderen begrenzt die Röntgenquellengröße $2r$ zusammen mit dem Abstand des Wafers von der Quelle d_1 die Energieauflösung. Die beiden letztgenannten Größen bestimmen, wie groß der Raumwinkel ist, aus dem Röntgenstrahlung auf einen gegebenen Punkt auf dem Wafer trifft. In der Ebene der Bragg-Reflexion gilt $\Delta\alpha = 2 \arctan(r/d_1)$. Der Winkel $\Delta\alpha$ lässt sich in Abhängigkeit der Geometrie des Aufbaus in einen äquivalenten Braggwinkel umrechnen:

$$\Delta\theta_{\text{geo}} = \Delta\alpha \frac{d_2}{d_1 + d_2} \approx 2r \frac{d_2}{d_1} \frac{1}{d_1 + d_2} \quad (3.14)$$

Der Wafer sollte also möglichst weit von der Quelle entfernt und möglichst nah an der CCD sein. Ein typischer Wert für das in dieser Arbeit vorgestellte Experiment ist etwa $\Delta\theta_{\text{geo}} = 0,05^\circ$.

Als letzter Aspekt können Pixelgröße und -abstand der CCD-Kamera die Auflösung begrenzen. Ein Unterschied im Braggwinkel $\Delta\theta$ entspricht auf der CCD-Kamera einer lateralen Distanz von $2(d_1 + d_2) \tan(\Delta\theta/2) \approx (d_1 + d_2)\Delta\theta$. Im vorliegenden Experiment ist der Strahlenweg von Quelle zu Kamera $d_1 + d_2$ mindestens 10 cm, der Pixelabstand beträgt 30 μm . Damit erhält man $\Delta\theta_{\text{CCD}} \leq 0,02^\circ$.

Aus dem größten dieser drei Winkelbereiche $\Delta\theta$ (hier ist es $\Delta\theta_{\text{rc}}$) lässt sich dann die Energieauflösung ΔE berechnen:

$$\Delta E(E) = \frac{hc}{\lambda(E) - \Delta\lambda/2} - \frac{hc}{\lambda(E) + \Delta\lambda/2} \quad (3.15)$$

$$= \frac{hc}{2d} \left(\frac{1}{\sin(\theta(E) - \Delta\theta/2)} - \frac{1}{\sin(\theta(E) + \Delta\theta/2)} \right) \quad (3.16)$$

$$= \frac{hc}{2d} \left(\frac{1}{\sin\left(\frac{hc}{2dE} - \Delta\theta/2\right)} - \frac{1}{\sin\left(\frac{hc}{2dE} + \Delta\theta/2\right)} \right) \quad (3.17)$$

Exemplarisch gibt das für $\Delta\theta = 0,1^\circ$ und 8 keV eine Energieauflösung von 0,05 keV. Zum Vergleich: Die natürlichen Linienbreiten der K-Linien von Kupfer betragen etwa 2 eV [KO79]. $K_{\alpha 1}$ - und $K_{\alpha 2}$ -Linie sind rund 20 eV auseinander, $K_{\alpha 1}$ - und K_{β} -Linie 0,86 keV [Bea67]. Damit sind die K_{α} -Linien mit den eben gegebenen exemplarischen Werten nicht mehr auflösbar, K_{α} - und K_{β} -Linien aber gut getrennt. Da die natürlichen Linienbreiten klein gegen die Auflösung sind, entsprechen die scheinbaren energetischen Linienbreiten direkt der Energieauflösung.

3.3.3 Energie der Röntgenimpulse

Die Energie der Röntgenimpulse wurde mit zwei unterschiedlichen Detektoren bestimmt: zum einen mit Si-pin-Photodioden, zum anderen mit einer Ionisationskammer.

In den Dioden verursacht jedes Elektron-Loch-Paar einen Strom $I(t)$ zwischen Anode und Kathode. Dieser wird von der Verstärkerschaltung um den Faktor 200 erhöht.

Detektiert man diesen verstärkten Strom mit dem Oszilloskop, führt das zu einer Spannung von $U(t) = R \cdot 200I(t)$. Aus der Integration von $U(t)$ über die Dauer Δt eines Spannungsimpulses, erhält man pro Elektron-Loch-Paar

$$A_0 = \int_{\Delta t} U(t) dt = R \int_{\Delta t} I(t) dt = R \cdot Q = 50 \Omega \cdot 200 \cdot e^- = 1,6 \cdot 10^{-15} \text{ V s} . \quad (3.18)$$

Misst das Oszilloskop über einen Spannungsimpuls den Wert A für das Integral, so lässt sich daraus die Gesamtenergie E' der Photonen, die Elektron-Loch-Paare erzeugt haben, berechnen:

$$E' = \frac{A \cdot E_{\text{eh}}}{A_0} = \frac{A \cdot 3,6 \text{ eV}}{1,6 \cdot 10^{-15} \text{ V s}} = \frac{A}{0,44 \text{ fV s}} \text{ eV} \quad (3.19)$$

E_{eh} ist dabei die Energie, die im Mittel pro Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares aufgewendet wird (siehe Seite 41). Unter der Annahme, dass nur Photonen mit einer Energie von 8 keV zum Integral beitragen, ergibt sich daraus deren Anzahl:

$$N'_{8 \text{ keV}} = \frac{E'}{8 \text{ keV}} = \frac{A}{3,6 \text{ pV s}} \quad (3.20)$$

Wenn die Effizienz der Diode bekannt ist, kann man daraus die Gesamtenergie E und die Gesamtzahl $N_{8 \text{ keV}}$ der auf die Diode getroffenen Photonen bestimmen. In AIM06 wurde die Effizienz für Dioden der gleichen Baureihe (Typ S3590-06) bestimmt; sie beträgt bei 4 keV bis 10 keV rund 95 %. Die Autoren vermaßen die Dicke der Totschicht und berücksichtigten die Absorption der aktiven Schicht und die Energieverluste durch Auger-Elektronen. Im hier vorgestellten Experiment musste darüber hinaus die Absorption eines Epoxidharzfenster vor der Diode berücksichtigt werden. Dazu wurde eine Diode aufgebrochen, das Fenster vom Halbleiter gelöst und anschließend die Transmission des Fensters für Kupfer- K_α -Strahlung mit einer Röntgenröhre gemessen. Sie betrug rund 80 %. Damit ergeben sich folgende Werte für die Gesamtenergie E und die Gesamtzahl $N_{8 \text{ keV}}$ der Photonen (wieder unter der Annahme, dass alle eine Energie von 8 keV haben), die tatsächlich auf die Diode getroffen sind:

$$E = \frac{A}{0,58 \text{ fV s}} \text{ eV} \quad (3.21)$$

$$N_{8 \text{ keV}} = \frac{A}{4,7 \text{ pV s}} \quad (3.22)$$

Wird der Gated Integrator zur Detektion des Diodenstroms verwendet, ergibt sich der integrierte Spannungsimpuls A für die vorhergehenden Überlegungen aus der Ausgangsspannung des Gated Integrators multipliziert mit der einstellten Verstärkung (in mV/V) und der Gatedauer.

Die Berechnung der Impulsenergie und der Anzahl der K_α -Photonen aus Messungen mit der Ionisationskammer erfolgt mit dem entsprechenden Wert für E_{eh} analog zu den Dioden.

3.3.4 Stabilität der Röntgenerzeugung

Die Stabilität der Röntgenerzeugung wurde mit Si-pin-Photodioden, Gated Integrator und Analog-Digital-Wandler gemessen, wie sie in Abschnitt 3.3.1 beschrieben sind.

Sie wurde über die empirische Standardabweichung (RMSE⁴)

$$s = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (3.23)$$

quantifiziert, wobei x_i die einzelnen Messwerte und \bar{x} der Mittelwert aller n Messwerte einer Messung sind.

Die eben beschriebene Messanordnung hat eine inhärentes Rauschen s von wenigen Millivolt bei Signalhöhen von 1 V bis 10 V, der inhärente Variationskoeffizient $s_{\text{rel}} = s/\bar{x}$ ist also in der Größenordnung weniger Promille.

3.3.5 Größe der Röntgenquelle

Die Größe der röntgenemittierenden Region kann aus dem Verlauf des Halbschattens bestimmt werden, den ein Objekt wirft, das zwischen der Röntgenquelle und einem Detektor steht.

Ein möglicher Messaufbau, in dem der Schattenwurf einer Kante gemessen wird, ist in Abbildung 3.8 skizziert. Die Kante sollte dabei möglichst stumpf sein, damit sie möglichst wenig Röntgenstrahlung transmittiert. Bei kleinen Quellengrößen oder sehr scharfen Kanten, wie beispielsweise Rasierklingen, kann es nötig sein, die Transmission in der Auswertung zu berücksichtigen [Uch06].

Abbildung 3.9 zeigt eine mit diesem Messaufbau gemachte typische Aufnahme einer Kante. Um die Größe der Röntgenquelle daraus zu erhalten, wird zunächst ein Profil des Helligkeitsverlaufs quer zum Kantenschatten erstellt. Die Ableitung dieses Profils gibt direkt den Intensitätsverlauf der röntgenemittierenden Region wieder, vergrößert um den Faktor d_2/d_1 (siehe Abbildung 3.8). Abbildung 3.10 zeigt diese Ableitung zusammen mit einer an sie angepassten Lorentzkurve. In der Nähe des Maximums gibt die Lorentzkurve den Intensitätsverlauf sehr gut wieder, in den Ausläufern weicht sie von den gemessenen Daten ab. Das liegt an der Röntgenstrahlung, die durch die Kante transmittiert wurde und im Graphen links des Maximums die Intensität des Ausläufers erhöht. Trotzdem reproduziert die Lorentzkurve die Breite der Verteilung und damit die Quellengröße sehr gut. Die durch die Kante transmittierte Röntgenstrahlung muss in der Auswertung also nicht berücksichtigt werden.

In den Bildern des Schattenwurfs sind die Pixelreihen meist nicht exakt parallel zum Schatten der Kante. Daher muss jedes Bild rotiert werden, um die tatsächliche Quellengröße zu erhalten. Der optimale Rotationswinkel lässt sich bestimmen, indem

⁴engl.: *root-mean-square error*

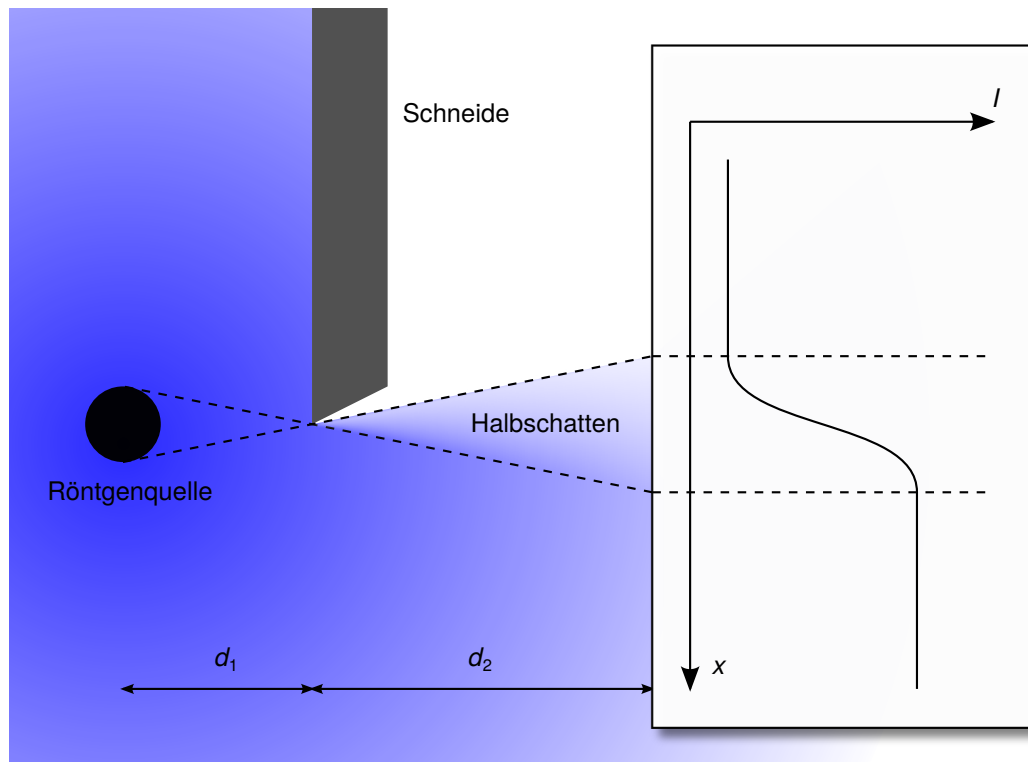


Abbildung 3.8: Halbschattenmethode zur Bestimmung der Röntgenquellengröße. Die von der Röntgenquelle erzeugte Röntgenstrahlung (blau) wirft einen Schatten der Schneide auf einen Bildschirm. Die Breite des Halbschattens am Rand des Schattens hängt direkt von der Röntgenquellengröße ab.

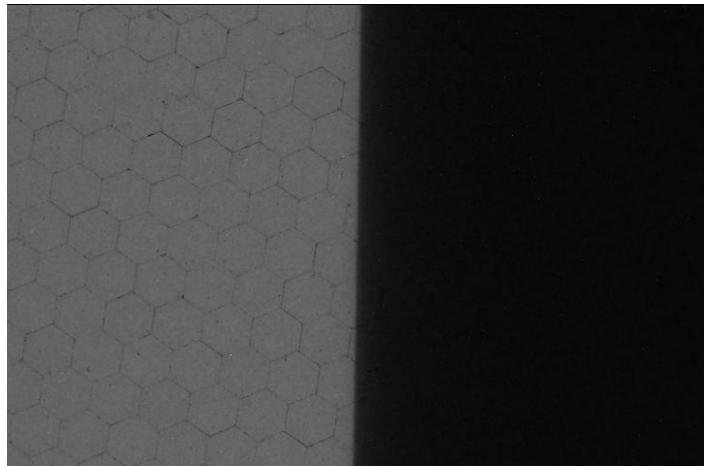


Abbildung 3.9: Schattenwurf einer Kante bei der Bestimmung der Röntgenquellengröße. Zur quantitativen Auswertung wird die Helligkeitsverteilung vertikal aufsummiert und der resultierende Intensitätsverlauf abgeleitet, das Ergebnis davon zeigt Abbildung 3.10. (Die Wabenstruktur ist ein Artefakt des Tapers in der CCD-Kamera, siehe Abschnitt 3.3.1).

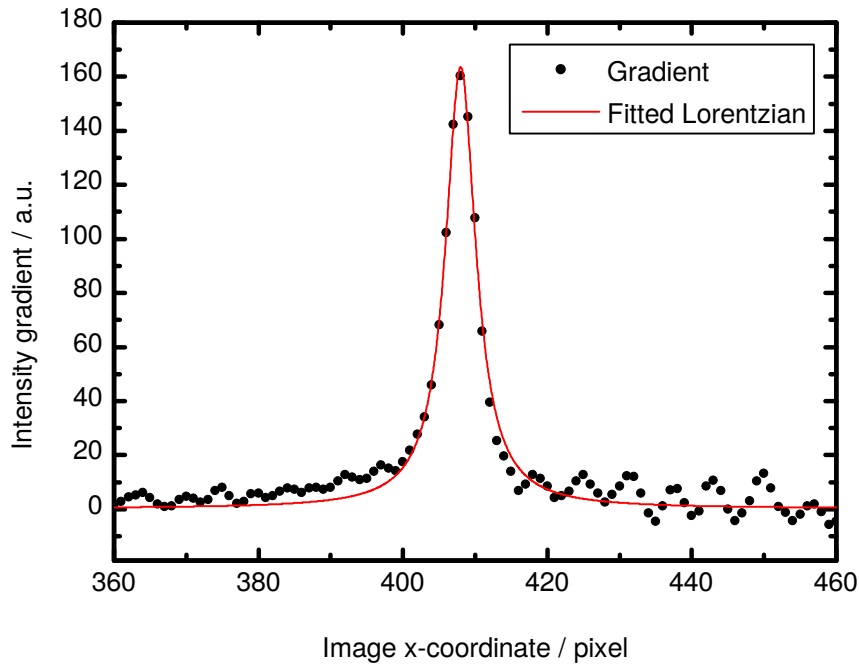


Abbildung 3.10: Ableitung des Helligkeitsprofils von Abbildung 3.9 mit angepasster Lorentzkurve. Die Asymmetrie der Ableitung ist auf durch die Kante transmittierte Röntgenstrahlung zurückzuführen. Diese Asymmetrie kann von der Lorentzkurve nicht wiedergegeben werden. Trotzdem gibt die angepasste Lorentzkurve die Breite der gemessenen Verteilung gut wieder. Die Oszillationen in den Flanken sind ein Artefakt der Wabenstruktur des Tapers, welche in Abbildung 3.9 zu erkennen ist.

man um einen Schätzwert herum in kleinen Schritten von etwa $0,01^\circ$ die scheinbare Quellengröße bestimmt. Man erhält einen Graph wie ihn Abbildung 3.11 zeigt, die Position des Minimums gibt den optimalen Rotationswinkel an, bei dem sich die tatsächliche Quellengröße bestimmen lässt.

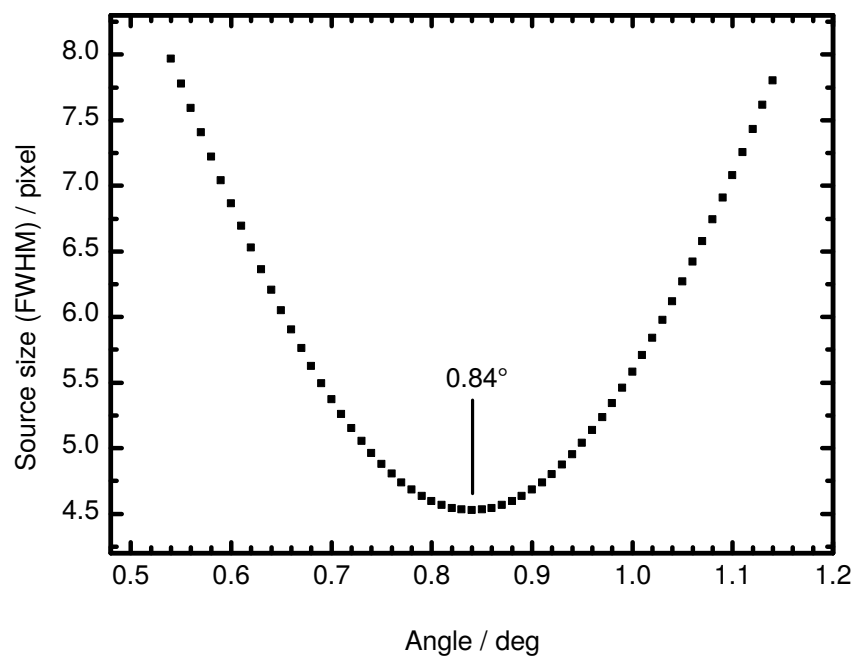


Abbildung 3.11: Bestimmung des optimalen Rotationswinkels bei der Halbschattenmethode. Da zur Bestimmung des Intensitätsprofils des Halbschattens entlang der Pixelreihen des CCD-Bilds aufsummiert wird, muss jedes Bild so rotiert werden, dass der Kantenschatten parallel zu den Pixelreihen ist.

4 Optimierung und Charakterisierung

In diesem Kapitel werden die Experimente vorgestellt, welche zur Optimierung der lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle durchgeführt wurden und verschiedene Aspekte der Anlage charakterisiert. Die dabei eingesetzten Methoden wurden in Abschnitt 3.3 beschrieben.

4.1 Variation der Polarisation des Laserlichts

Die Polarisation des Laserlichts beeinflusst die Röntgenerzeugung durch ihre Rolle bei den wirkenden Absorptionsmechanismen (siehe Abschnitt 2.1.2). Bei resonanter Absorption und dem Brunel-Effekt trägt nur der Teil der elektrischen Felds bei, der parallel zum Plasmagradien polarisiert ist. Inverse Bremsstrahlung ist dagegen bei linearer

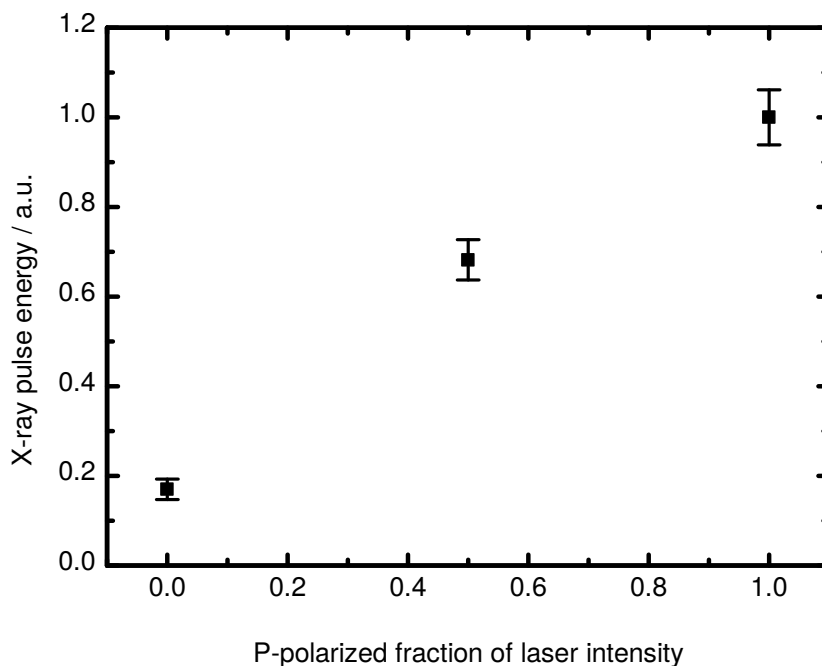


Abbildung 4.1: Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit der p-polarisierten Komponente des Laserlichts. Die Impulsenergie steigt mit dem p-polarisiertem Anteil des Laserlichts.

polarisiertem Licht unabhängig von der Polarisation. Da der Absorptionsmechanismus nicht von vornherein bekannt ist, wurden verschiedene Polarisationen getestet, um die Röntgenerzeugung zu optimieren: parallele, senkrechte und zirkulare Polarisation (relativ zur Ebene, die Wellenvektor und Flächennormale des Kupferbands aufspannen). Das Ergebnis dieser Messungen zeigt Abbildung 4.1. Als x-Achse wurde in diesem Graphen die Intensität der p-polarisierten Komponente gewählt, da nur sie bei resonanter Absorption und beim Brunel-Effekt eine Rolle spielt. Die Intensitäten sind auf den höchsten gemessenen Wert normiert, der bei p-Polarisation gemessen wurde. Bei s-Polarisation fällt die Röntgenintensität auf ca. 17 % ab. Bei zirkularer Polarisation liegt sie bei 68 %. Der RMSE beträgt bei zirkularer und p-Polarisation etwa 6 %, bei s-Polarisation 14 %.

Die Tatsache, dass sich die Röntgenintensität bei s- und p-Polarisation stark unterscheidet, schließt inverse Bremsstrahlung als dominanten Absorptionsmechanismus aus. Sollte jedoch nur resonante Absorption oder der Brunel-Effekt zur Absorption beitragen, müssten die Intensität bei zirkularer Polarisation auf 50 % und bei s-Polarisation auf Null gefallen sein. Die Diskrepanz von 17 % bzw. 18 % lässt auf einen gewissen Anteil an inverser Bremsstrahlung schließen. Aufgrund der Normierung der Daten würde ein konstanter Anteil von 17 % allerdings bei zirkularer Polarisation nur zu 59 % der Maximalintensität führen. Die verbleibenden 10 % sind vermutlich auf Unterschiede zwischen linearer und zirkularer Polarisation bei der Absorption durch inverser Bremsstrahlung zurückzuführen [KR99].

Zusammengefasst legen die vorliegenden Daten nahe, dass resonante Absorption oder Brunel-Effekt die dominanten Absorptionsmechanismen sind, inverse Bremsstrahlung aber auch einen gewissen Beitrag liefert. Für den experimentellen Betrieb wurde im Weiteren p-Polarisation verwendet.

4.2 Einfluss des Einfallswinkels des Laserlichts auf die Röntgenerzeugung

Der Einfallswinkel des Laserlichts auf das Kupferband kann die Effizienz der Röntgenerzeugung wie in Abschnitt 2.1 beschrieben stark beeinflussen (siehe auch Gib09 und Lu09). Um den Punkt maximaler Röntgenerzeugung für das gegebene Lasersystem zu finden, wurde der Einfallswinkel des Laserlichts in Schritten von 5° variiert und dabei die Intensität der Röntgenstrahlung gemessen. Nach jeder Änderung des Winkels wurde die fokussierende Linse verschoben, um die Flächenleistungsdichte auf dem Kupferband wieder zu optimieren, falls der Fokus trotz sorgfältiger Justage nicht genau über dem Drehpunkt der Kupferbandhalterung liegen sollte. Aus diesen Messungen wurde die durchschnittliche Impulsenergie, der RMSE und die Geschwindigkeit der Abnahme der Röntgenimpulsenergie durch akkumulierten Debris bestimmt. Diese Daten zeigt Abbildung 4.2.

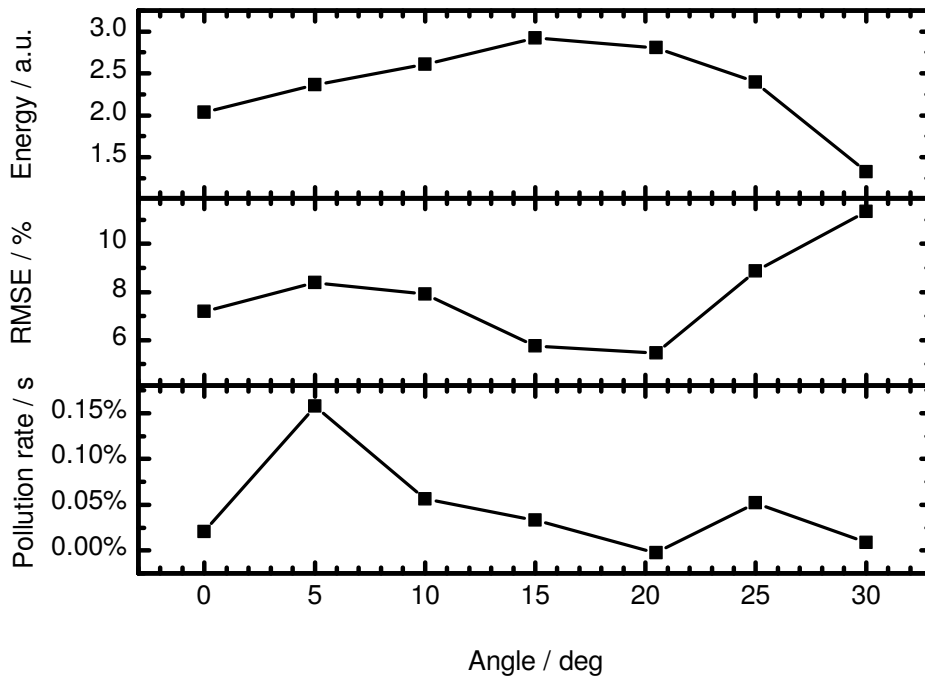


Abbildung 4.2: Einfallswinkelabhängigkeit der Röntgenerzeugung. Die Graphen zeigen von oben nach unten die Röntgenimpulsenergie, deren Rauschen und die Abnahme der Impulsenergie mit der Zeit durch Anhäufung von Debris im Strahlengang.

Die Röntgenimpulsenergie zeigt ein breites Maximum. Das Maximum ist etwa um den Faktor 2 größer als der kleinste gemessene Wert. Die höchste Impulsenergie wurde bei 15° gemessen.

Der RMSE zeigt ein im Wesentlichen zur Impulsenergie inverses Verhalten: ein breites Minimum. Nur bei senkrechtem Einfall nimmt der RMSE wieder ab, anstatt weiter zuzunehmen. Kleinster und größter Wert unterscheiden sich ebenfalls um etwa den Faktor 2. Der kleinste gemessene Wert liegt bei 20° und ist damit leicht gegenüber dem Maximum der Impulsenergie bei 15° verschoben.

Die Verschmutzungsrate unterliegt stärkeren Variationen als Impulsenergie und RMSE. Ihr Minimum liegt bei 20°. In diesem Minimum konnte über die verwendete Messdauer im Rahmen der Messgenauigkeit keine Abnahme der Röntgenimpulsenergie festgestellt werden.

Das Optimum des Einfallswinkels für den experimentellen Betrieb ist aufgrund dieser Messungen in der Nähe von 20° zu verorten. Der RMSE ist hier am kleinsten und auch die Verschmutzungsrate hat hier ihr Minimum, so dass hier am längsten gemessen werden kann. Die Impulsenergie ist bei 20° außerdem kaum geringer als in ihrem Maximum bei 15°.

4.3 Optimierung der Laserlichtintensität auf dem Kupferband

Die Intensität des Laserlichts auf dem Kupferband lässt sich über drei Parameter variieren: Impulsdauer, Lichtbündeldurchmesser und Impulsenergie.

Die Impulsdauer lässt sich über den Chirp und damit durch den Gitterabstand im HE-Kompressor einstellen. Der Gitterabstand ändert wellenlängenabhängig den optischen Weg durch den Kompressor und dadurch dessen GVD. Dadurch werden die einzelnen Frequenzkomponenten eines Impulses gegeneinander verschoben. Die Einhüllende der Frequenzkomponenten (die den Gesamtimpuls darstellt) kann dadurch zeitlich verlängert werden. Mit dem Verschieben der Frequenzkomponenten geht immer auch eine Änderung der Frequenzfolge innerhalb der Impulse einher. Jede Impulsdauer (außer der Minimalen) lässt sich entweder mit positivem (Frequenz nimmt zu) oder negativem Chirp (Frequenz nimmt ab) einstellen. Die Impulsenergie bleibt beim Verstellen des Kompressors konstant.

Der Lichtbündeldurchmesser kann eingestellt werden, indem die fokussierende Linse entlang der Strahlachse verfahren wird. Dabei ändert sich die Wellenfrontkrümmung aufgrund der PTD und damit die Impulsdauer allerdings ebenfalls leicht (siehe Abschnitt 3.2.1). Der Verstellweg liegt üblicherweise im Bereich von $\pm 2\text{ mm}$ um den Fokus, die PTD sollte damit die Impulsdauer um höchstens 15 fs verändern (siehe Abschnitt 3.2.1).

Die Impulsenergie wurde nicht variiert, um die Gesamtenergie der Röntgenimpulse maximal zu halten.

Im Folgenden ist zu beachten, dass mit einer Veränderung der Impulsparameter auch immer eine Änderung der Plasmaparameter einhergeht. Der Grund hierfür ist, dass sich Intensitätsänderungen der Laserimpulse auch immer auf die plasmaerzeugenden Komponenten des Impulses, die Flanken oder Vorimpulse, auswirken.

Optimierung des Gitterabstands im Kompressor

Abbildung 4.3 zeigt die Röntgenimpulsenergie in Abhängigkeit des Abstands der Gitter im HE-Kompressor. Die Linse wurde vor der Messung auf maximale Intensität justiert. Man sieht zwei Maxima, getrennt von einem scharfem Minimum. Das Minimum ist in der näheren Umgebung des Punktes mit der besten Komprimierung und damit der höchsten Intensität. Bei kleineren Abständen ist der Chirp positiv, bei größeren negativ. Die Kurve ist bezüglich des Punktes mit der höchsten Laserlichtintensität asymmetrisch. Die Maxima sind unterschiedlich hoch, das kleinere bei positivem Chirp ist etwas breiter. Bei gleicher Laserimpulsdauer unterscheidet sich also die Röntgenimpulsenergie, je nachdem ob der Impuls positiv oder negativ geschirpt ist. Weitere ähnliche Messungen haben außerdem ergeben, dass die genaue Position des Minimums und der Maxima von der Entfernung der Linse zum Kupferband abhängt.

Für diese Daten folgen aus der aktuellen Literatur unterschiedliche Erklärungsansätze. Während diese Ansätze jedoch den qualitativen Verlauf der Röntgenintensität mit der

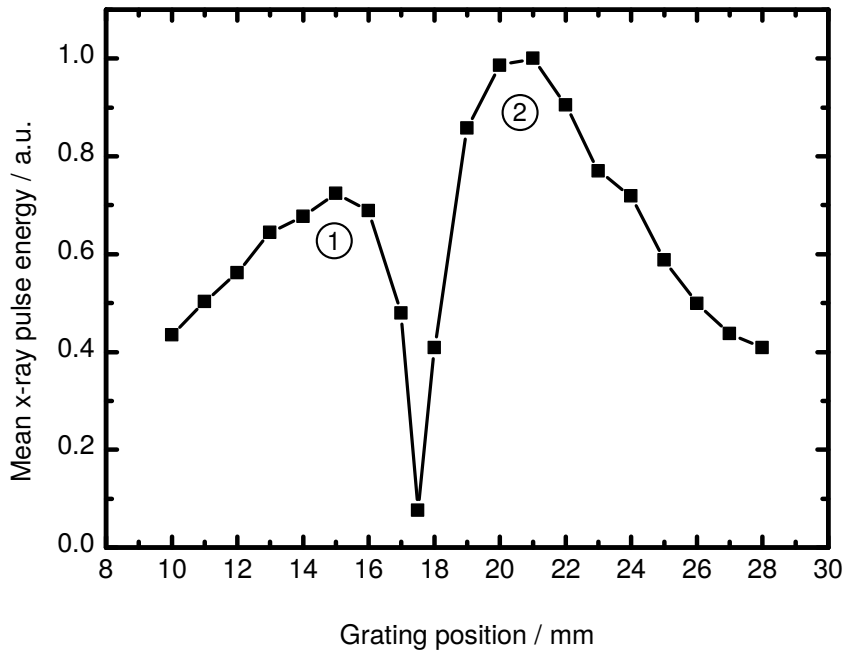


Abbildung 4.3: Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit des Gitterabstands im Kompressor. Die kürzesten Impulse werden etwa im Minimum erzeugt, Maximum 1 ist positiv gechirpt (Wellenlänge nimmt ab), Maximum 2 negativ (Wellenlänge nimmt zu).

Gitterposition erklären können, erschließt sich aus keiner der Grund für das Schieben des Minimums. Auch bei den auf den Seiten 56–58 vorgestellten Messungen der Röntgenintensität in Abhängigkeit des Abstands zwischen Linse und Kupferband wird sich zeigen, dass noch weitere Effekte eine Rolle spielen müssen. Im Folgenden werden nun drei Modelle für den Verlauf der Röntgenintensität mit der Gitterposition vorgestellt. Anschließend werden mögliche Gründe für das Schieben des Minimums gegeben.

Der erste Erklärungsansatz findet sich in Ede00. Bei resonanter Absorption steigt die kinetische Energie der beschleunigten Elektronen (welche die Röntgenstrahlung erzeugen) mit steigender Impulsintensität an. Zunächst erhöht das die Energie der Röntgenimpulse. Wenn jedoch die Elektronen zu schnell werden, sinkt die Wahrscheinlichkeit, dass sie mit den Kupferatomen wechselwirken bevor sie das Kupferband durchquert haben und die Röntgenimpulsenergie sinkt wieder.

Ein anderes Modell ergibt sich aus den Simulationen in GB92. Für bestimmte Plasmaskalenlängen im Bereich von Zehnteln der Laserlichtwellenlänge gibt es bei steigender Laserimpulsintensität ein scharfes Minimum in der Absorption des Laserlichts, wenn die Exkursionsamplitude der im Laserlichtfeld oszillierenden Elektronen größer wird als die resonante Region des Plasmas (siehe Abschnitt 2.1.2). Nach diesem Minimum nimmt die

Absorption steigender Intensität wieder zu, da dann der Brunel-Effekt effektiv einsetzt. Nach dieser Interpretation würde dieses Minimum mit dem Minimum in Abbildung 4.3 korrespondieren.

Eine dritte Möglichkeit hängt mit dem Kontrast des Lasersystems zusammen. Bis zu einer gewissen Impulsdauer haben Vorimpulse des Lasersystems nicht ausreichend Intensität, um ein Plasma zu erzeugen. Das Plasma entsteht deswegen erst durch den Hauptimpuls in dessen ansteigender Flanke. In diesem Fall hat das Plasma kaum Zeit zu expandieren, seine Skalenlänge ist klein. Damit herrschen gute Bedingungen für den Brunel-Effekt. Werden die Impulse kürzer und damit intensiver, kann bereits ein Vorimpuls das Plasma erzeugen. Wegen des größeren zeitlichen Abstands zum Hauptimpuls kann sich dieses Plasma dann ausdehnen und eine größere Skalenlänge bekommen, bevor der Hauptteil des Impulses es erreicht. Dadurch verschlechtern sich die Bedingungen für Brunel-Absorption im Hauptimpuls. Der Hauptabsorptionsmechanismus geht dann zu resonanter Absorption über, deren Effizienz je nach den spezifischen Bedingungen schlechter sein kann.

Die Asymmetrie bezüglich des Minimums im Graphen aus Abbildung 4.3 kann bei all diesen Mechanismen vom unterschiedlichen Vorzeichen des Chirp herrühren. Ein solcher Effekt wurde beispielsweise in Che08 beobachtet. Eine weitere Ursache kann die Krümmung der Wellenfront aufgrund des durch die fokussierende Linse verursachten Laufzeitunterschieds sein, die nach der Linse in Strahlrichtung kontinuierlich abnimmt (siehe Abschnitt 3.2.1).

Die Position des Minimums sollte wie schon erwähnt nach den bisher vorgestellten Modellansätzen unabhängig vom Abstand der Gitter im Kompressor sein und sich am Ort minimaler Impulslänge befinden. Eventuell tragen Nichtlinearitäten bei der Röntgenerzeugung in Kombination mit der PTD der Fokussierung und dem Chirp dazu bei, dass diese Abhängigkeit trotzdem existiert.

Optimierung des Abstands zwischen Linse und Kupferband

Über den Abstand zwischen Linse und Kupferband lässt sich die Intensität der Lichtimpulse auf dem Kupferband bei konstanter Impulsdauer verändern. Dabei spielen auch Effekte der Fokussierung wie die Laufzeitdifferenz (PTD, siehe Abschnitt 3.2.1) eine Rolle. Im Folgenden werden die Messungen zur Optimierung des Abstands von Linse zu Kupferband bei verschiedenen Gitterabständen im Kompressor vorgestellt. Als Einstellungen für den Gitterabstand wurden diejenigen der Maxima und des Minimums aus Abbildung 4.3 verwendet. Sie werden in der Folgenden Diskussion Chirpmaximum 1 und 2 und Chirpminimum genannt. Die gemessenen Röntgenimpulsenergien zeigt Abbildung 4.4.

Alle Messungen zeigen ein relativ breites Maximum um den Punkt des kleinsten Fokus. Die Form der Maxima zeigt andeutungsweise eine leichte Doppelpeak-Struktur. In der linken Flanke (Fokus vor dem Kupferband) von Chirpmaximum 2 und dem -minimum

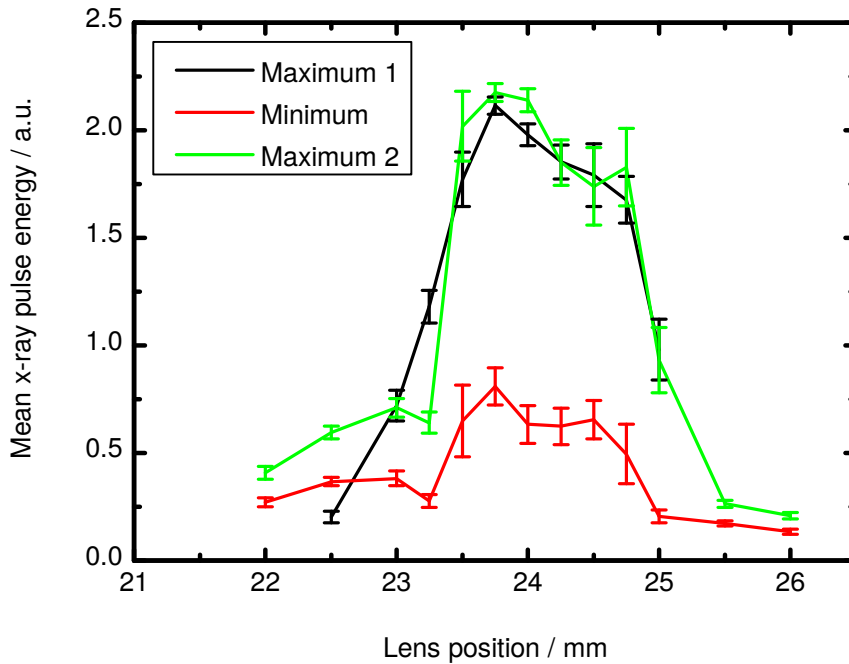


Abbildung 4.4: Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit der Linsenposition. Der Fokus liegt bei niedrigen Werten vor dem Kupferband, bei hohen dahinter. Die drei Kurven wurden an den Extremstellen der Röntgenimpulsenergie in Abhängigkeit des Gitterabstands im HE-Kompressor gemessen (siehe Abbildung 4.3)

fällt die Röntgenimpulsenergie schneller als in Chirpmaximum 1 und erreicht ein lokales Minimum bei 23,25 mm.

Der globale Verlauf der Kurven in Chirpmaximum 1 und 2 entspricht grob den Erwartungen: Mit abnehmender Laserlichtintensität auf dem Kupferband wird auch die Röntgenimpulsenergie geringer. Die Verteilung ist relativ breit und hat eine angedeutete Doppelpeakstruktur. Dafür könnte ein beginnender Einbruch der Röntgenimpulsenergie bei der hier erreichten maximalen Lichtintensität aufgrund einer der drei auf den Seiten 55–56 beschriebenen Mechanismen verantwortlich sein.

Der Verlauf der Kurve im Chirpminimum entspricht dem der Kurve im Chirpmaximum 2. Nach den oben vorgestellten Modellen würde man jedoch erwarten, dass der resultierende Graph eine andere Form hat, nämlich qualitativ diejenige, die aus dem Variieren des Gitterabstands hervorgeht (Abbildung 4.3): Aus einem Minimum bei höchster Lichtintensität, das durch einen in diesen Modellen beschriebenen Mechanismus entsteht, sollte durch Verringern der Lichtintensität die Röntgenimpulsenergie zunächst steigen und dann wieder absinken. Ob die Intensität (bei gegebener Energie) durch

Vergrößern der Fläche oder der Impulsdauer verkleinert wird, sollte dabei keine Rolle spielen.

Die drei auf den Seiten 55–56 gegebenen Interpretationen des Minimums, die ausschließlich die Intensität und nicht separat die Impulsdauer und die Energieflächendichte als Parameter betrachten, können in dieser einfachen Form also nicht ganz zutreffen. Die Impulsdauer scheint einen starken Einfluss auf die Röntgenerzeugung zu haben, auch wenn sich die Impulsintensität nicht ändert. Eine möglichst kurze Impulsdauer ist für den gegebenen Aufbau nicht optimal für die Röntgenerzeugung.

Folgerungen für den Betrieb

Für die Optimierung der Anlage konnte aus den Messungen dieses Abschnitts geschlossen werden, dass eine iterative Optimierung von Gitterabstand im Kompressor und Linsenposition bei der Justage nötig ist und dass der Kompressor auf maximale Röntgenleistung justiert werden muss, nicht auf minimale Dauer der Pumpimpulse.

4.4 Einfluss des Debris-Schutz auf die Röntgenerzeugung

Das Eintrittsfenster der Vakuumkammer muss vor Debris (Kupferstaub und -gas, siehe Abschnitt 3.2.5) geschützt werden, da es von den Laserimpulsen zerstört wird, sobald sich eine opake Schicht auf dem Fenster akkumuliert. Zunächst fing ein Plastikband vor dem Eintrittsfenster den Debris ab, wie es auch beispielsweise in den in Bar06 und in Zha05 beschriebenen Anlagen realisiert ist. Das Plastikband ist zwischen Kupferband und Eintrittsfenster der Vakuumkammer im Brewsterwinkel zum Strahlengang des Laserlichts gespannt. Der genaue Aufbau ist in Abschnitt 3.2.5 beschrieben und in Abbildung 3.6 gezeigt. Das Plastikband wird im Betrieb kontinuierlich ausgetauscht, indem ein Vorrat von einer Spule abgewickelt wird, am Eintrittsfenster vorbei läuft und von einer zweiten Spule aufgenommen wird. Die Spulen werden von DC-Motoren angetrieben, die auch dafür sorgen, dass das Plastikband stets gespannt ist. Es wurde ein Plastikband von möglichst hoher optischer Qualität und gleichmäßiger Dicke (50 μm) gewählt. Das Band wurde von der Firma BLEHER FOLIEN-TECHNIK bezogen, von der auch das in den eben erwähnten Publikationen benutzte Plastikband ist.

Im Folgenden sollte der Einfluss des Plastikbands auf die Stabilität der Röntgenerzeugung untersucht werden. Dazu wurde zunächst die von den einzelnen Laserimpulsen erzeugte Röntgenimpulsenergie bei kontinuierlich ausgetauschtem Plastikband über einen Zeitraum von knapp sechs Minuten erfasst. Dann wurde das Plastikband angehalten und die Messung wiederholt. Das so gewonnenen Daten zeigt Abbildung 4.5.

Bei sich bewegendem Plastikband schwankt die Röntgenimpulsenergie um bis zu $\pm 40\%$ um ihren Mittelwert. Der RMSE beträgt 19 %. Die Zeitskala der größten Schwankungen liegt im Bereich einiger zehn Sekunden. Glättet man die Daten so, dass nur

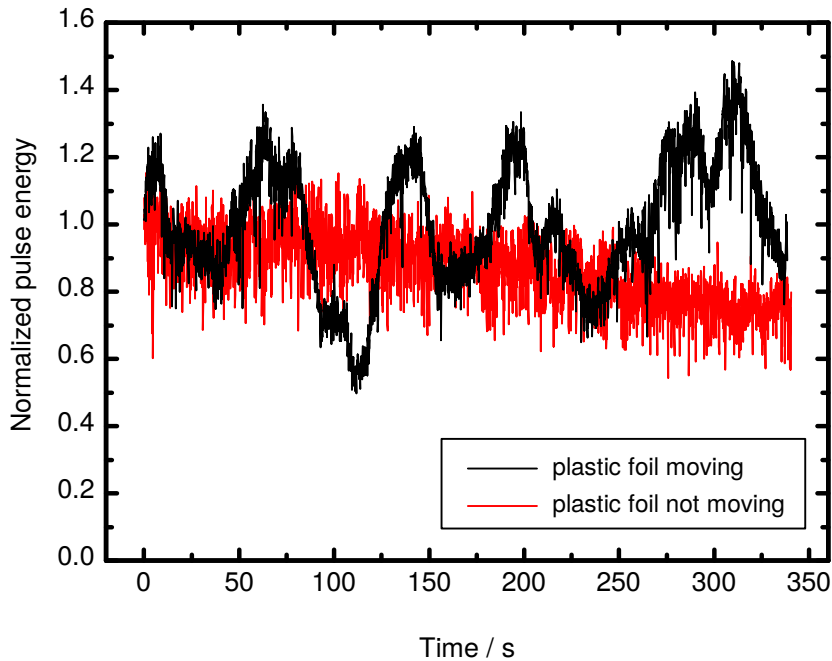


Abbildung 4.5: Schwankungen der Röntgenimpulsenergie mit laufendem und stehendem Plastikband vor dem Eintrittsfenster. Bei laufendem Plastikband schwankt die Röntgenimpulsenergie stark. Bei stehendem Plastikband zeigt sich dessen zunehmende Verschmutzung in einer Abnahme der Röntgenimpulsenergie von 0,075 %/s.

diese großen Schwankungen verbleiben (Savitzky-Golay, 2. Ordnung, Fensterbreite 10 s) und betrachtet dann den RMSE relativ zu diesen geglätteten Daten, bleibt ein von Impuls zu Impuls relativ gleichmäßiges Rauschen mit einigen Ausreißern zu niedrigen Röntgenimpulsenergien. Der RMSE beträgt dann etwa 5 %.

Bei der Messung mit stehendem Plastikband sind die Schwankungen im Zehn-Sekunden-Bereich deutlich reduziert. Der für diese Abnahme korrigierte RMSE liegt bei gut 7 %. Bei geglätteten Daten (wie bei der Messung mit sich bewegendem Plastikband) reduziert sich dieser Wert um etwa ein halbes Prozent. Die Röntgenimpulsenergie nimmt mit 0,075 %/s ab. Die Daten zeigen, dass das Plastikband die starken Impulsenergieschwankungen im Bereich einiger zehn Sekunden verursacht.

Um den Einfluss des Plastikbands auf das Laserlichtbündelprofil genauer zu untersuchen, wurde das Licht eines Helium-Neon-Lasers durch ein Teleskop auf etwa 4 cm aufgeweitet (so dass es dem Laserlichtbündeldurchmesser bei der Röntgenerzeugung entspricht) und dessen Intensitätsprofil nach Transmission durch das Plastikband beobachtet.

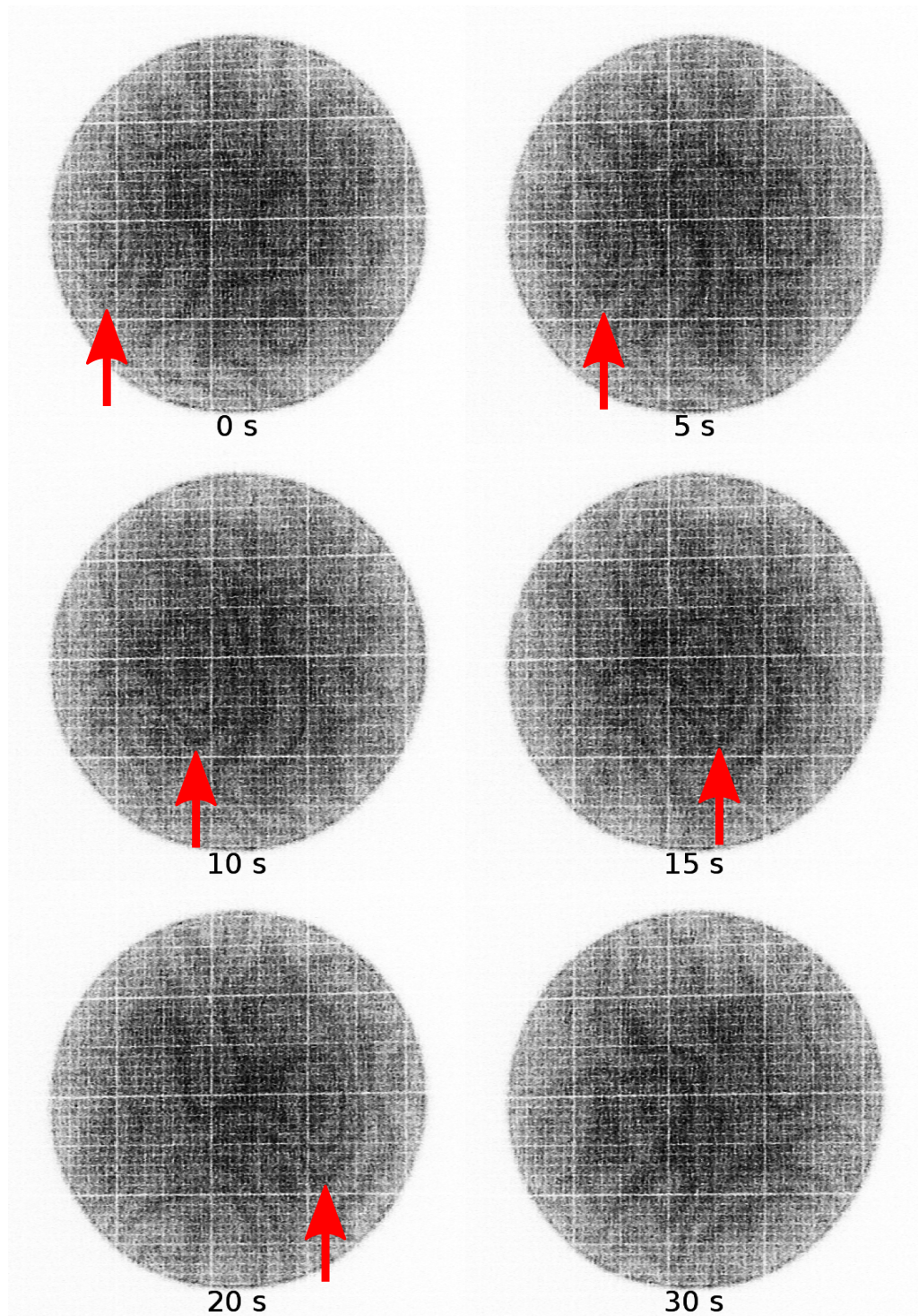


Abbildung 4.6: Bündelprofil eines aufgeweiteten Helium-Neon-Lasers nach Transmission durch ein bewegtes Plastikband zu verschiedenen Zeiten. Man erkennt Interferenzmuster, die in etwa 30 s das Bündelprofil von links nach rechts durchwandern.

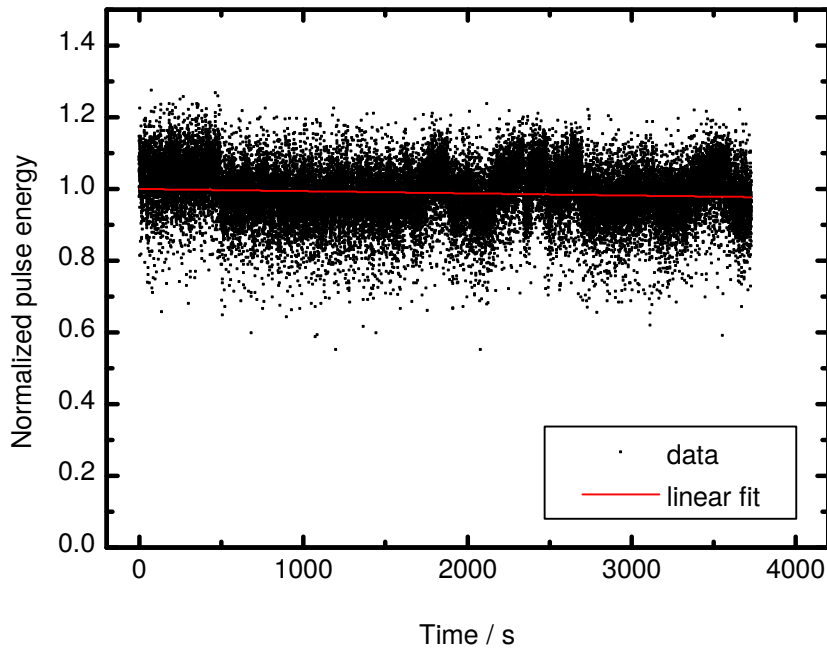


Abbildung 4.7: Abnahme der Röntgenimpulsenergie mit der Zeit mit Hohlkonus statt Plastik-Band als Debris-Schutz. Die angepasste Gerade hat eine Steigung von $-2\%/h$.

Abbildung 4.6 zeigt dieses Intensitätsprofil auf Millimeterpapier zu verschiedenen Zeitpunkten. Man sieht ein Interferenzmuster, das den ausgeleuchteten Bereich innerhalb von circa 30 s durchwandert. Anhand der Anzahl der Interferenzringe kann abgeschätzt werden, dass der Gangunterschied innerhalb der Wellenfront über das gesamte Intensitätsprofil mehrere Wellenlängen beträgt. Eine Verschiebung der Wellenfront um eine Wellenlänge geschieht dabei typischerweise über eine laterale Distanz von einigen Millimetern. Die Krümmung der Wellenfront verändert die Intensitätsverteilung im Fokus und ist daher für die Schwankungen in der Röntgenimpulsenergie verantwortlich.

Da ein qualitativ hochwertigeres Plastikband nicht zu erhalten war, wurde eine andere Methode getestet, um das Eintrittsfenster vor Debris zu schützen: Ein Hohlkonus aus Aluminium wurde auf das Fenster aufgesetzt (siehe Abschnitt 3.2.5 und Abbildung 3.6b dort). Das fokussierte Laserlicht läuft innerhalb dieses Hohlkonus bis kurz vor das Kupferband und tritt erst dort durch eine kleine Apertur aus dem Konus aus. Der Hohlkonus minimiert somit die Oberfläche, durch die Debris zum Eintrittsfenster gelangen kann und reduziert so die Verschmutzungsrate des Fensters. Die Wirksamkeit des Hohlkonus wurde durch eine Messung getestet, indem die Röntgenimpulsenergie über einen längeren Zeitraum für jeden Impuls erfasst wurde. Diese Messung zeigt Abbildung 4.7.

Die Röntgenimpulsenergie sinkt über den gemessenen Zeitraum nur schwach ab. Ein linearer Fit ergibt, dass sie sich um 2 %/h verringert. Diese Verschmutzungsrate liegt in einem akzeptablen Bereich. Es sind immer noch Sprünge und Drifts der Impulsenergie zu erkennen, jedoch von deutlich geringerer Amplitude verglichen zur Messung mit sich bewegendem Plastikband. Der RMSE liegt bei knapp 8 %. Glättet man die Daten wie bei den Messungen mit bewegtem Plastikband und betrachtet das Rauschen relativ dazu, verringert sich der RMSE auf 6 %. Der RMSE bleibt dabei vergleichbar zu dem, der sich aus den geglätteten Daten der Messungen mit Plastikband ergibt. Aufgrund dessen ist der Hohlkonus im hier vorgestellten Aufbau dem Plastikband als Debris-Schutz vorzuziehen.

4.5 Stabilität der Führung des Kupferbands

Ein wichtiger Faktor für die Stabilität der Röntgenerzeugung ist die Führung des Kupferbands. Ändert das Band während einer Messung seine Position, variiert damit auch die Intensität des Laserlichtbündels auf dem Kupferband, was wiederum die Röntgenerzeugung beeinflusst.

Um diesen Faktor zu untersuchen, wurde die Bewegung des Kupferbands mit einem Aufbau zur optischen Kohärenztomographie (OCT¹) [Hua91] der Gruppe von Prof. Robert Huber untersucht. Hiermit lässt sich die Position einer Metalloberfläche auf 5 µm genau verfolgen.

Während der Bandtransport lief, wurde nun zu verschiedenen Zeitpunkten die Position der Oberfläche erfasst. Es wurden mehrere Messreihen mit unterschiedlichen Abtastintervallen gemacht. Während einiger Messungen wurde die Laufrichtung des Bands umgekehrt oder die Innenkassette gegenüber der Trägereinheit verschoben (siehe unten). Abbildung 4.8 zeigt die gemessenen Positionen des Bands der gesamten Messreihe, wobei die Daten der einzelnen Messungen aneinander gehängt wurden (in ihrer zeitlichen Reihenfolge). Abbildung 4.9 enthält das Histogramm dieser 164 Messpunkte.

Die Abbildungen zeigen, dass sich die Position des Bands während des Betriebs ändert. Bei den meisten Messpunkten ist die Auslenkung des Bands aus der Ruhelage kleiner als 20 µm, maximal beträgt sie rund 70 µm. Dabei fällt auf, dass die Position des Bands bei den kürzeren Messungen stärker schwankt als bei der längeren. Im Bereich der stärksten Schwankungen, etwa ab Sekunde 600, wurde die Laufrichtung des Bands öfter geändert und die Innenkassette gegenüber der Trägereinheit verschoben. Ansonsten lief das Band während einer Messung kontinuierlich in eine Richtung, auch während der kürzeren Messungen bis Sekunde 100.

Zusammengenommen lassen die Daten darauf schließen, dass die großen Auslenkungen hauptsächlich auf das Anlaufen des Bands, die Richtungswechsel, sowie das Verschieben der Innenkassette zurückzuführen sind. Im Normalbetrieb reduziert sich das Vorkommen

¹engl.: *Optical Coherence Tomography*

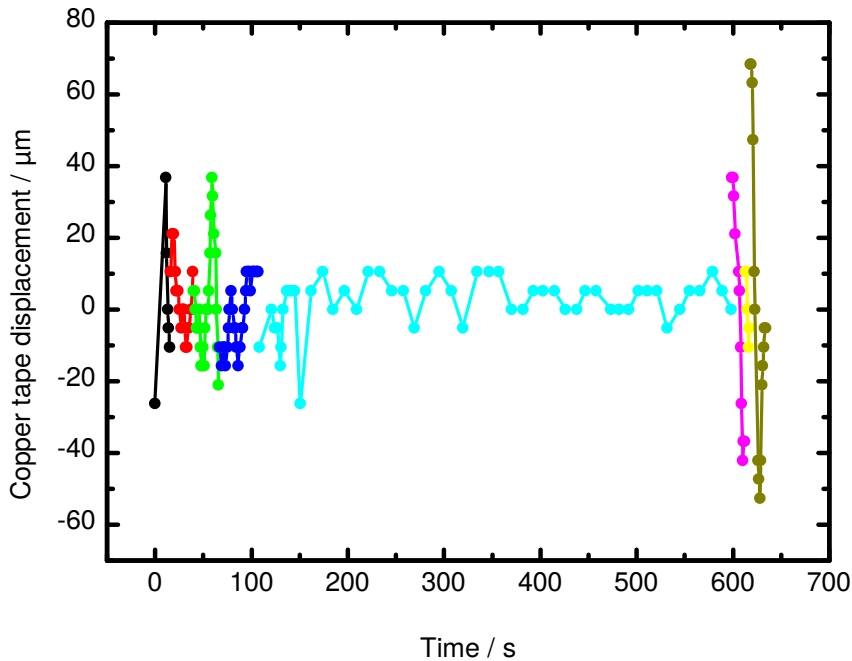


Abbildung 4.8: OCT-Messreihe der Bewegung der Kupferbands entlang seiner Oberflächennormalen während des Bandtransports. Die einzelnen Messpunkte geben die Verschiebung des Bands an. Die verschiedenen Farben kennzeichnen die einzelnen Messungen der Messreihe.

der größeren Auslenkungen, da während der gezeigten Messreihe deutlich häufiger Richtungswechsel und Verschiebungen der Innenkassette vorgenommen wurden.

Die Positionsänderungen sollten jedoch für alle gemessenen Auslenkungen die Laserlichtintensität auf dem Kupferband und damit die Röntgenerzeugung nicht stark beeinflussen. Das lässt sich anhand der Messungen der Röntgenimpulsenergie in Abhängigkeit der Linsenposition aus Abschnitt 4.3 abschätzen. Eine mit OCT gemessenen Änderung der Bandposition ist äquivalent zu einer Verschiebung der fokussierenden Linse, wenn man die OCT-Bandposition mit dem Kosinus des Einfallswinkels des Laserlichts multipliziert. Die gemessenen Auslenkungen ändern demnach die Röntgenimpulsenergie nur im Sub-Prozent-Bereich.

Die Amplitude der so verursachten Röntgenimpulsenergieschwankungen liegt damit deutlich unter dem RMSE der optimierten Röntgenerzeugung (5 % bis 10 %, siehe Abschnitt 4.8). Sie hat deswegen keine wesentliche Auswirkung auf das Rauschen.

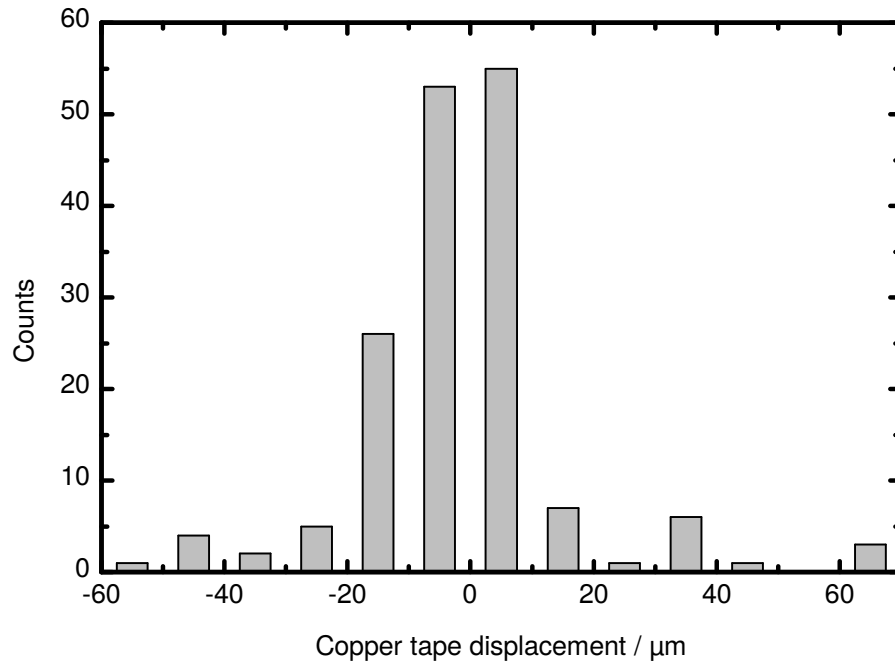


Abbildung 4.9: Histogramm der OCT-Messreihe der Bewegung der Kupferbands entlang seiner Oberflächennormalen aus Abbildung 4.8. Bei den meisten Messpunkten begrenzt sich die Auslenkung auf $\pm 20 \mu\text{m}$. Sporadisch kommt es zu größeren Auslenkungen von maximal $\pm 70 \mu\text{m}$.

4.6 Spektrum der Röntgenstrahlung

Das Spektrum der Röntgenquelle wurde mit der in Abschnitt 3.3.2 beschriebenen wellenlängendispersiven Methode gemessen. Mit der Anordnung aus Abbildung 3.7 wurde zunächst das Spektrum und anschließend der Streustrahlungshintergrund erfasst. Für Letzteres wurde ein Strahlblock aus Stahl zwischen Röntgenquelle und Wafer platziert. Abbildung 4.10 zeigt das daraus ermittelte hintergrundkorrigierte Spektrum.

Die charakteristischen K-Linien (K_α bei $8,0 \text{ keV}$ und K_β bei $8,9 \text{ keV}$) sind gut zu erkennen. Von der K_α -Linie ausgehend steigt die Intensität der Grundlinie sowohl zu niedrigeren als auch zu höheren Energien hin an. Die Energieauflösung des Spektrums ergibt sich aus der Breite der charakteristischen Linien zu etwa $0,05 \text{ keV}$ (siehe Abschnitt 3.3.2).

Der Anstieg zu höheren Energien ist vermutlich auf Bremsstrahlung zurückzuführen. Um effektiv charakteristische K-Linien-Strahlung zu erzeugen sind nämlich Elektronentemperaturen von einigen 10 keV nötig [Sal02], wobei das Maximum der Bremsstrahlung dann bei ähnlichen Energien zu erwarten ist. Der Anstieg unterhalb der K_α -Linie ist eher durch die Hintergrundkorrektur bedingt oder stammt von Bremsstrahlung aus

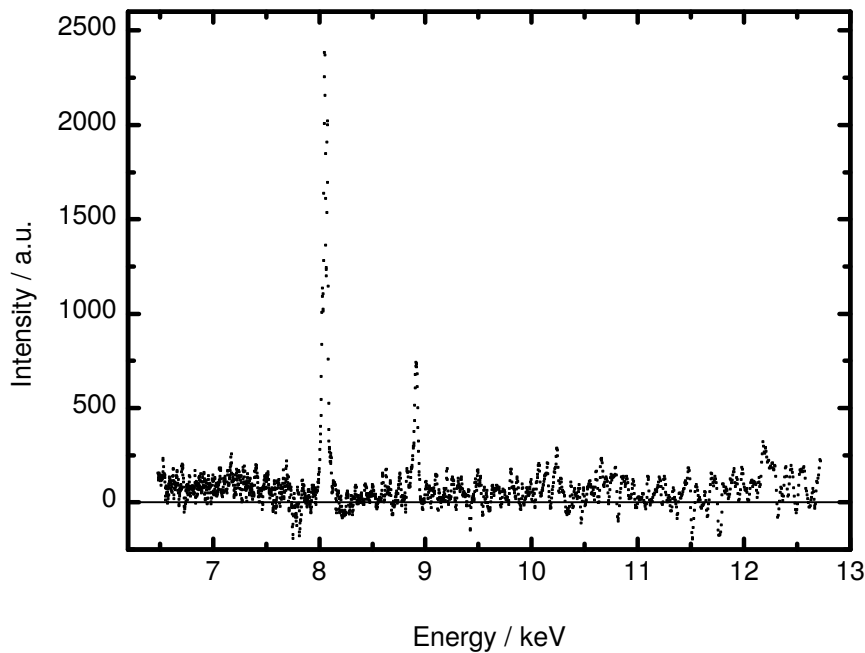


Abbildung 4.10: Spektrum der Röntgenquelle. Die charakteristischen Linien sind K_α bei 8,0 keV und K_β bei 8,9 keV. Die Energieauflösung lässt sich aus der Breite dieser Linien auf etwa 0,05 keV abschätzen.

höheren Ordnungen der Bragg-Reflexion. Bei der Aufnahme des Hintergrunds soll ein Strahlblock verhindern, dass Röntgenstrahlung über Bragg-Reflexionen im Wafer die Kamera erreicht. Er verhindert aber auch, dass Röntgenstrahlung vom Wafer gestreut wird und streut die Röntgenstrahlung selbst. Der gemessene Streustrahlungshintergrund entspricht also nicht exakt dem, der bei der Aufnahme des Spektrums mit erfasst wird.

Eine Abschätzung des Verhältnis von charakteristischer Strahlung zu Bremsstrahlung aus den gezeigten Daten ist schwierig, da die Amplitude des Rauschens der Grundlinie vergleichbar mit der Signalstärke der Bremsstrahlung ist.

4.7 Bestimmung der Größe der Röntgenquelle

In Abschnitt 4.3 wurde die Röntgenimpulsenergie in Abhängigkeit der Position der fokussierenden Linse für verschiedene Gitterabstände im Kompressor gemessen. Um die Maxima der Röntgenimpulsenergie wurde dabei auch die Größe der Röntgenquelle bestimmt.

Dazu wurde für verschiedene Linsenposition der Schattenwurf einer Kante mittels CCD aufgenommen. Aus jedem Schattenwurf lässt sich dann nach der Methode aus

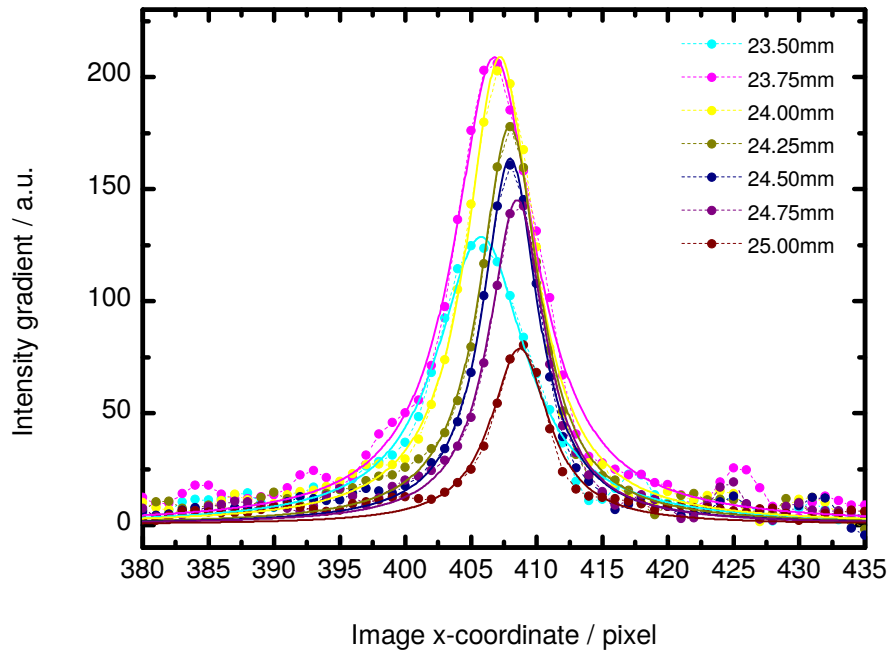


Abbildung 4.11: Gradienten der Intensitätsverteilung der Röntgenquelle für verschiedene Linsenpositionen. Die gestrichelten Linien mit den Datenpunkten zeigen den gemessenen Gradienten, die durchgezogenen Linien die angepassten Lorentzkurven. Die Positionen der Maxima schieben mit der Linsenposition.

Abschnitt 3.3.5 die Größe der Röntgenquelle, ihre Position sowie die relative Energie der Röntgenimpulse ermitteln.

Abbildung 4.11 zeigt die Ableitungen der Helligkeitsprofile der Schattenwürfe (aus denen die Quellengröße hervorgeht) für verschiedene Linsenpositionen aus Chirpmaximum 2 (aus Abb. 4.3). Die angepassten Lorentzkurven sind ebenfalls in der Abbildung dargestellt. Sie entsprechen dem Verlauf der Gradienten vor allem in der Nähe der Maxima gut. In den Ausläufern gibt es Abweichungen. Die Breite auf halber Höhe der gemessenen Kurven, die der Quellengröße entspricht, wird durch die angepassten Lorentzkurven gut erfasst, ebenso die Position und die Amplitude. Die Position der Maxima schiebt über die dargestellten Linsenpositionen um ca. drei Pixel. Die Ursache für das Schieben der Maxima ist, dass die optische Achse der fokussierenden Linse und die Achse des Linearverschiebers, auf dem sie montiert ist, nicht ganz parallel sind. Drei Pixel entsprechen einer Verschiebung des Fokus in Strahlrichtung um $13\text{ }\mu\text{m}$, was sich kaum auf die Röntgenerzeugung auswirkt (siehe auch Abschnitt 4.5).

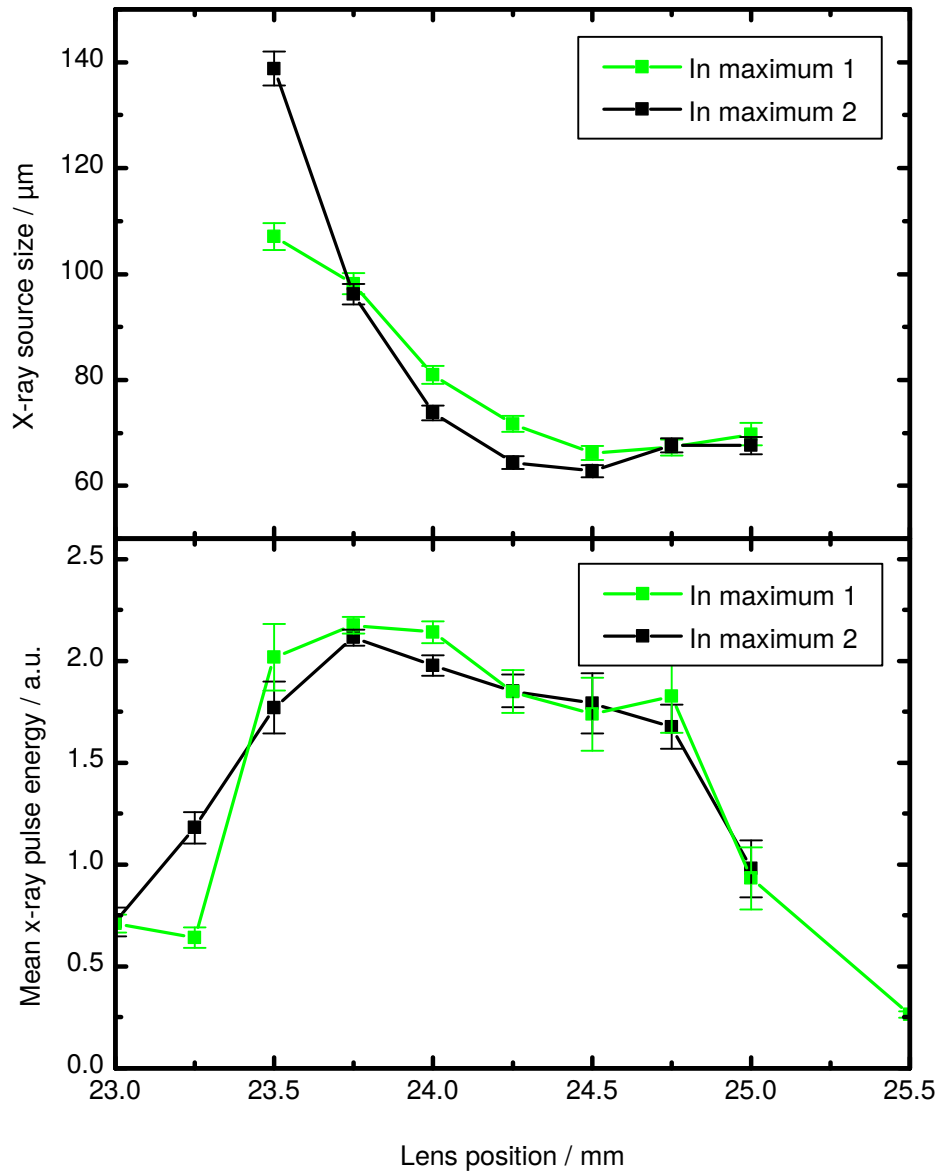


Abbildung 4.12: Größe der Röntgenquelle im Vergleich zur Röntgenimpulsenergie für verschiedene Linsenpositionen. Die Daten sind an den beiden Maxima der Röntgenimpulsenergie in Abhängigkeit des Gitterabstands im HE-Kompressor aufgenommen. Die Minima der beiden Kurven fallen zusammen, sind jedoch gegenüber dem Maximum der Röntgenimpulsenergie (in Abhängigkeit der Linsenposition) verschoben.

Abbildung 4.12 zeigt die auf diese Weise gewonnenen Quellendurchmesser (FWHM) für Kompressormaximum 1 und 2. Zum Vergleich ist dort auch der Verlauf der Röntgenimpulsenergie mit der Linsenposition aus Abbildung 4.4 nochmals dargestellt.

Die Minima der Quellengröße liegen in der Nähe der Maximalwerte der Impulsenergie, fallen jedoch nicht genau mit ihnen zusammen. Vom Minimum ausgehend vergrößern sich die Quellengrößen schneller zu niedrigen Werten der Linsenposition hin als zu hohen.

Die minimalen Durchmesser liegen in beiden Fällen bei 24,50 mm und betragen 66 μm bzw. 63 μm für Kompressormaximum 2 und Kompressormaximum 1. Bei der Linsenposition mit der höchsten Röntgenimpulsenergie (23,75 mm) beträgt der Röntgenquellendurchmesser 98 μm bzw. 96 μm . In den Minima der Quellgrößen sind die Röntgenimpulsenergien nur wenig schwächer als in ihren Maxima. Jedoch ist der RMSE dort jeweils doppelt so groß wie in den Maxima der Impulsenergien.

Dass das Minimum der Quellengröße nicht mit dem Maximum der Röntgenimpulsenergie zusammenfällt, ließe sich am besten mit den Modellen in Abschnitt 4.3 auf Seite 55 beschreiben.

4.8 Zusammenfassung der Parameter der optimierten Röntgenquelle

Dieser Abschnitt fasst die Parameter zusammen, welche die lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieser Arbeit erreichte.

Die Anzahl der erzeugten Röntgenphotonen pro Laserimpuls und Sterad liegt im normalen Betrieb bei über $1,0 \cdot 10^{10}/\text{sr}$ mit maximalen Werten von bis zu $2,9 \cdot 10^{10}/\text{sr}$. In den Fokus der Röntgenoptik gelangen damit $1,2 \cdot 10^8$ bis zu $3,4 \cdot 10^8$ Photonen pro Laserimpuls (gerechnet mit Reflektivität und Aufsammelwinkel der Röntgenoptik). Die Impulsenergie schwankt mit einem RMSE von 5 % bis 10 %. Dabei sind über längere Zeiträume immer noch gewisse Drifts zu beobachten (siehe z. B. Abb. 4.7). Der Durchmesser der Röntgenquelle beträgt bei maximaler Röntgenerzeugung 0,1 mm. Er kann bis auf etwa 0,06 mm reduziert werden.

Die Röntgenoptik bildet die Quelle um den Faktor 3 vergrößert ab. Man erhält im Fokus $1,5 \cdot 10^{12}/\text{cm}^2$ bis maximal $4,3 \cdot 10^{12}/\text{cm}^2$ Röntgenphotonen pro Impuls und Fläche. Die Energieflächendichte beträgt damit 2,0 mJ/cm² bis maximal 5,5 mJ/cm². Die Konvergenz der Strahlung nach der Röntgenoptik beträgt 12 mrad oder 0,7°.

Bei den referenzierten TRXRD-Messung, die in Kapitel 5 beschrieben werden, beträgt der RMSE unter den eben beschriebenen Bedingungen bei einer Messzeit pro Datenpunkt von zehn Minuten weniger als 0,2 %. Aus den Messungen an Gallium-Arsenid bei 400 nm Anregungswellenlänge (Abschnitt 5.7) geht hervor, dass die Röntgenimpulsdauer deutlich unter 20 ps liegt. Theoretisch beträgt sie etwas mehr als die Laserimpulsdauer, also einige hundert Femtosekunden.

4.8 Zusammenfassung der Parameter der optimierten Röntgenquelle

Material	Laserparameter	Quellgröße [μm]	Photonen		Publikation
			pro Sekunde [1/(sr s)]	pro Impuls [1/sr]	
Cu	10 Hz, 45 fs, 160 mJ	100	$2,9 \cdot 10^{11}$	$2,9 \cdot 10^{10}$	diese Arbeit
Cu	10 Hz, 200 fs, 200 mJ	50	$9 \cdot 10^{10}$	$9 \cdot 10^9$	Ede00
Cu (25 μm)	10 Hz, 130 fs, 300 mJ	54×40	$2,7 \cdot 10^{10}$	$2,7 \cdot 10^9$	FBT02
H ₂ O-Jet	10 Hz, 150 fs, 300 mJ	30	$1,1 \cdot 10^8$	$1,1 \cdot 10^7$	Ful07
Hg-Jet	5 kHz, 55 fs, 3 mJ	14×19	$5 \cdot 10^9$	$1 \cdot 10^6$	Rei07
Ga-Jet	1 kHz, 50 fs, 1,8 mJ	k. A.	$4 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^4$	Kor02
Cu (20 μm)	10 Hz, 150 fs, 120 mJ	k. A.	$5,2 \cdot 10^9$	$5,2 \cdot 10^8$	Lu09
Cu (300 nm)			$8,2 \cdot 10^8$	$8,2 \cdot 10^7$	
Ti (20 μm)			$1,4 \cdot 10^{10}$	$1,4 \cdot 10^9$	
Ti (30 nm)			$1,2 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^8$	
Ni (10 μm)	1 kHz, 45 fs, 5,5 mJ	10	$3,4 \cdot 10^9$	$3,4 \cdot 10^6$	Zha05
Ni (10 μm)			$3,3 \cdot 10^9$	$3,3 \cdot 10^6$	

Tabelle 4.1: Parameter der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen im Vergleich zu anderen Anlagen. (Tabelle modifiziert übernommen aus Tro10.)

Tabelle 4.1 vergleicht einige der eben genannten Parameter mit denen anderer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen. Der Vergleich zeigt, dass sich die optimierte lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle durch die höchsten Photonenzahlen – sowohl pro Sekunde als auch pro Impuls – auszeichnet. Das zu Beginn von Kapitel 3 erwähnte Ziel, im Rahmen dieser Arbeit eine lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle zu entwickeln, die sich durch eine geringe Zahl an nötigen Anregevorgängen speziell für die Untersuchung organischer Proben eignet, wurde damit erreicht.

5 Transiente Röntgenbeugung

Röntgenbeugungsexperimente ermöglichen neben wenigen anderen Methoden, wie Kernspinresonanz, Elektronen- und Neutronenbeugung, den direkten Einblick in die atomare Struktur der Materie. Die Kenntnis dieser Struktur ist entscheidend für das Verständnis verschiedenster Eigenschaften und Prozesse in Physik, Chemie und Biologie. Die klassische nicht-zeitaufgelöste Strukturaufklärung ist dabei auf Gleichgewichtszustände der Materie beschränkt. Für das Verständnis von Strukturodynamik und der darin involvierten transienten Strukturen muss man sich daher auf Modelle verlassen. *Transiente Röntgenbeugung* (TRXRD¹) mit einer Zeitauflösung im Sub-Pikosekunden-Bereich ermöglicht dagegen einen direkten Zugang zu dieser Strukturodynamik. [MKF91]

In der vorliegenden Arbeit wurde transiente Röntgenbeugung mittels eines Anregungs-Abtast-Aufbaus durchgeführt. Ein Laserimpuls löst dabei in einer Probe eine Reaktion aus, die mit einem Röntgenimpuls, der in genau definiertem Zeitabstand folgt, untersucht wird. Durch Variieren der Verzögerung zwischen den beiden Impulsen können Momentaufnahmen von verschiedenen Zeitpunkten des Reaktionsverlaufs gemacht werden. Dieser lässt sich so über ein weites Zeitintervall von typischerweise einigen Nanosekunden mit einer Auflösung im Bereich von 0,1 ps verfolgen.

5.1 Grundlagen der transienten Röntgenbeugung

Dieser Abschnitt soll einen kurzen Überblick darüber geben, auf welche Weise sich Änderungen der Struktur auf die Röntgenbeugung auswirken. Im Folgenden werden dabei grundlegende Kenntnisse über Röntgenbeugung z. B. über das Braggsche Gesetz und Strukturfaktoren vorausgesetzt (siehe z. B. War90).

Einen guten Überblick über den Zusammenhang zwischen Änderungen des Gitters und Beugung von Röntgenstrahlung bieten Bargheer et al. [Bar06]. Wie dort beschrieben gibt es im Rahmen der kinematischen Röntgenbeugungstheorie drei Ansatzpunkte, über die Strukturänderungen die Röntgenbeugung beeinflussen können: die Gitterkonstante, der Strukturfaktor und der Debye-Waller-Faktor.

Änderungen der Gitterkonstante d manifestieren sich dabei nach dem Braggschen Gesetz

$$n\lambda = 2d \sin \theta. \quad (5.1)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge der Röntgenstrahlung, θ der Winkel unter dem ein Reflex auftritt und n die Ordnung des Reflexes. Da bei fixer Wellenlänge für einen bestimmten

¹engl.: *transient x-ray diffraction*

Reflex n und λ gegeben sind, führt eine Änderung von d zu einer Änderung des Winkels θ unter dem der Reflex zu beobachten ist. Je nachdem, ob sich die Gitterkonstante im ganzen oder nur in Teilen des abgetasteten Volumens ändert, entstehen Seitenreflexe oder es verschieben sich die Bragg-Reflexe im Ganzen.

Änderungen des Strukturfaktors wirken sich dagegen auf die Intensität der Bragg-Reflexion aus. Sie kann dabei sowohl ab- als auch zunehmen. Der Strukturfaktor wird durch die Basis des Kristallgitters bestimmt und ändert sich, wenn die Bestandteile der Basis oder ihre Positionen zueinander verändert werden.

Der Debye-Waller-Faktor zuletzt gibt an, um wieviel die Intensität eines Bragg-Reflexes durch Unordnung im Gitter reduziert wird, die durch die thermische Bewegung der Atome verursacht wird. Er ist definiert als das Verhältnis der reduzierten Intensität I_r zur Intensität des Reflexes bei einem idealen Kristall I_0 :

$$\frac{I_r}{I_0} = \exp \left[-\frac{1}{3} \langle \mathbf{u}^2 \rangle \mathbf{G}^2 \right] = \exp \left[-\frac{1}{3} \langle \mathbf{u}^2 \rangle \frac{16\pi^2 \sin^2 \theta}{\lambda} \right] \quad (5.2)$$

Dabei ist \mathbf{G} der reziproke Gittervektor eines Reflexes, $\langle \mathbf{u} \rangle$ das zeitliche Mittel der quadratischen Abweichung der Atome von ihrem idealen Gitterplatz, θ der Winkel, unter dem der Bragg-Reflex auftritt und λ die Wellenlänge der Röntgenstrahlung.

Diese Mechanismen erklären einen Großteil der beobachteten Phänomene. Nur in hoch symmetrischen Halbleiterkristallen, die beispielsweise für die Chip-Industrie gefertigt werden, kommen andere Effekte zum Tragen: Die bisher vorgestellten Mechanismen beinhalten alle die Annahme, dass Kristalle aus vielen Mikrokristalliten bestehen und dass Strahlung, die von einem Mikrokristallit reflektiert wird, nicht mit der eines anderen interferieren kann. Ist die Symmetrie der Kristalle hoch genug, trifft diese Annahme nicht mehr zu und es kommt zu Interferenzeffekten, die durch die Theorie der dynamische Röntgenbeugung nach Takagi [Tak69] beschrieben werden können, deren Vertiefung aber den Rahmen der hier gebrachten überblicksartigen Darstellung der transienten Röntgenbeugung sprengen würde.

5.2 Aufbauweiterung zu einem Anrege-Abtast-Experiment

In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie mit der bereits in den Abschnitten 3.1 und 3.2 beschriebenen lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle Anrege-Abtast-Experimente durchgeführt werden können. Einen schematischen Überblick des dafür nötigen Aufbaus zeigt Abbildung 5.1. Im Folgenden wird das grundsätzliche Funktionsprinzip des Anrege-Abtast-Experiments kurz beschrieben, bevor in den nächsten Unterabschnitten genauer auf die einzelnen Komponenten aus der Abbildung eingegangen werden soll.

Das Lasersystem, das zur Röntgenerzeugung verwendet wird, liefert zwei Impulse in definiertem zeitlichen Abstand (siehe Abschnitt 3.1). Der niederenergetischere Impuls

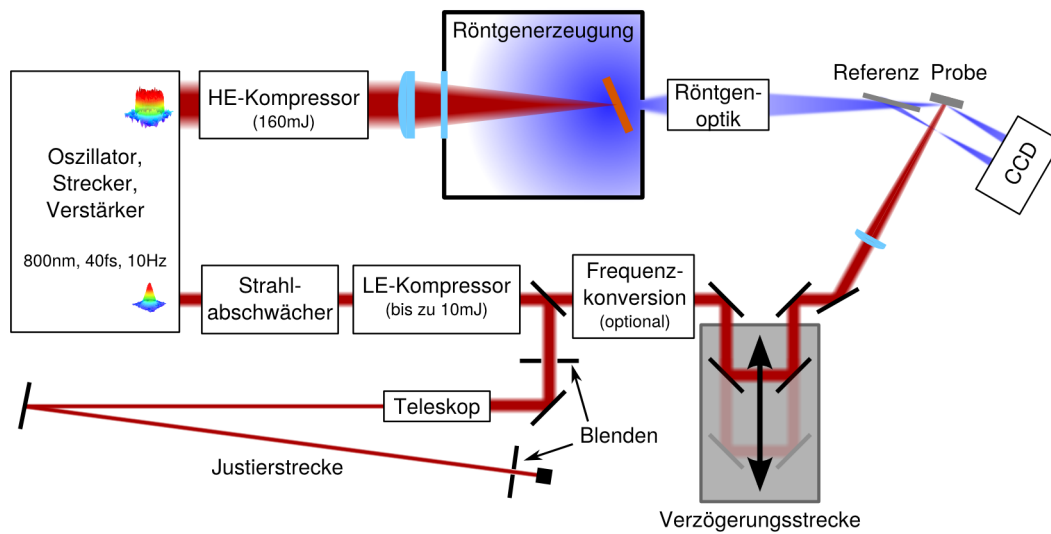


Abbildung 5.1: Schema des Aufbaus des Anrege-Abtast-Experiments für zeitaufgelöste Femtosekunden-Röntgenbeugung. Zur Anregung werden die Impulse aus dem LE-Kompressor genutzt. Sie werden zunächst frequenzkonvertiert (optional) und laufen dann über die Verzögerungsstrecke, die den zeitlichen Abstand zwischen Anregung und Abtastung einstellt. Anschließend werden sie auf die Probe fokussiert. Zur Abtastung werden mit Laserimpulsen aus dem HE-Kompressor wie in Abschnitt 3.2 beschrieben Röntgenimpulse erzeugt. Die Röntgenstrahlung wird mit einer Montel-Optik auf die Probe fokussiert. Zusätzlich dargestellt ist ein Abschwächer, mit dem die Energie der Anregeimpulse eingestellt wird, eine Justierstrecke sowie ein Referenzkristall, der einen Teil der fokussierten Röntgenstrahlung vor der Probe herausreflektiert. Sowohl die vom Probenkristall reflektierte Röntgenstrahlung, als auch die vom Referenzkristall werden mit einer CCD-Kamera detektiert.

löst eine Reaktion in einer Probe aus. Der hochenergetische erzeugt einen Röntgenimpuls (wie in Abschnitt 3.2 beschrieben), mit dem strukturelle Änderungen in der Probe detektiert werden können. Der zeitliche Abstand zwischen Anregung und Abtastung kann durch die Verzögerungsstrecke variiert werden, welche den optischen Weg der Anregeimpulse bestimmt und sich im Strahlengang der Anregeimpulse befindet. Der Röntgen-Abtastimpuls wird durch eine Röntgenoptik auf die Probe fokussiert (siehe Abschnitt 5.2.2). Optional bestehen auch noch die Möglichkeiten, die Frequenz des Anregeimpulses zu verändern oder seine Intensität abzuschwächen, um die Anregebedingungen an die Probe anzupassen (siehe Abschnitt 5.2.1). Die folgenden Unterpunkte dieses Abschnitts beschreiben den Anregearm, die Fokussierung der Röntgenstrahlung und die Aufbauten zur Probenpositionierung.

5.2.1 Anregung

Der Anregeimpuls durchläuft auf seinem Weg zur Probe einen Strahlabschwächer, den Kompressor, optional die Frequenzkonversion, die Verzögerungsstrecke und zuletzt eine

fokussierende Linse. Eine Justierstrecke direkt nach dem LE-Kompressor ermöglicht eine schnelle Justage. Im folgenden Abschnitt werden diese Komponenten in dieser Reihenfolge beschrieben.



Abbildung 5.2: Strahlabschwächer im Anregearm

Strahlabschwächer Durch den Strahlabschwächer lässt sich die Impulsenergie für die Anregung optimieren, um den bestmöglichen Kompromiss zwischen Signalstärke und Lebensdauer der Probe einstellen zu können. Er besteht aus einer $\lambda/2$ -Platte und zwei darauf folgenden Dünnschicht-Polarisatoren, wie es Abbildung 5.2 zeigt. Mit der $\lambda/2$ -Platte lässt sich die (lineare) Polarisation des Laserlichts drehen. Von den Polarisatoren wird anschließend nur der p-polarisierte Anteil reflektiert. Die Impulsenergie lässt sich so stufenlos abschwächen.

Frequenzkonversion Bei einigen Messungen im Rahmen dieser Arbeit sollte Licht mit 400 nm Wellenlänge zur Anregung der Probe verwendet werden. Mittels Frequenzverdopplung (SHG²) vom Typ 1 können die Anregeimpulse mit ursprünglich 800 nm Wellenlänge entsprechend konvertiert werden.. Dafür wurde ein BBO-Kristall³ ($\theta = 29^\circ$ und $\phi = 0^\circ$) eingesetzt. Der Aufbau zur Frequenzkonversion ist auf einem Breadboard (120 cm \times 60 cm) verwirklicht. So kann die vorhandene Summenfrequenzerzeugung bei Bedarf schnell durch andere Aufbauten ersetzt werden, die an anderer Stelle vorjustiert werden können.

Verzögerungsstrecke Die Verzögerungsstrecke besteht aus einem Linearverschieber (PHYSIK INSTRUMENTE, M-531.PD) und mehreren Spiegeln in einem Aufbau den Abbildung 5.3 zeigt. Jeder Laserimpuls läuft viermal entlang des Linearverschiebers. So lässt sich ein Zeitbereich von 4 ns in Schritten von 6,7 fs abtasten. (In Abbildung 5.1 ist wegen der übersichtlicheren Darstellung eine Variante der Verzögerungsstrecke abgebildet, bei welcher der Laserimpuls nur zweimal über den Linearverschieber läuft.) Die Verzögerungsstrecke wird so justiert, dass auch bei größeren Verstellwegen so wenig Winkel- oder Parallelversatz auftritt, dass sich die Anregungsbedingungen am Probenort nicht ändern. Die mechanische Präzision der Verschiebestrecke ist sehr hoch. Die Impulsdauer der Anrege- und Abtastimpulse ist deutlich größer als die zeitlichen

²engl.: *second harmonic generation*

³Beta-Bariumborat (β -BaB₂O₄)

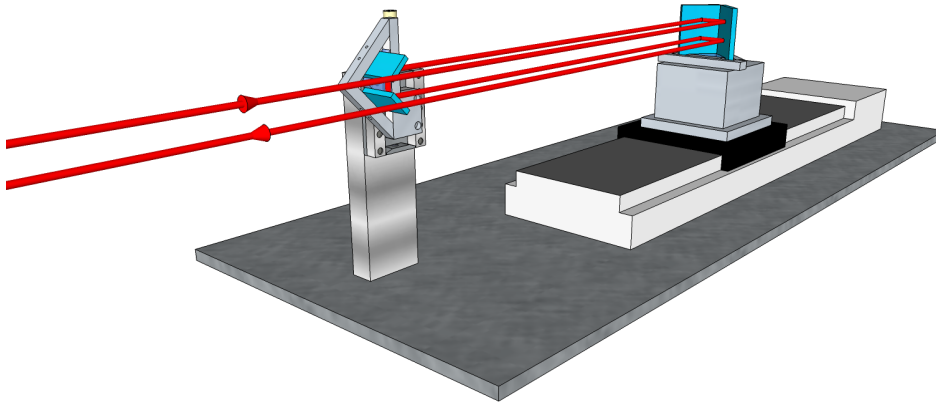


Abbildung 5.3: Strahlengang der Verzögerungsstrecke. Die Verzögerungsstrecke besteht aus einem Linearverschieber und zwei Spiegelpaaren, deren Spiegel jeweils senkrecht zueinander sind. Das Laserlichtbündel fällt parallel zur Achse des Linearverschiebers ein. Es läuft dann zuerst über das Spiegelpaar auf dem Linearverschieber, das es horizontal versetzt zurückreflektiert. Dann trifft es auf das feststehende Spiegelpaar, das es vertikal versetzt und wieder zurück über das erste Spiegelpaar schickt.

Abweichungen, die durch Ungenauigkeiten bei der Positionierung entstehen. Daher beeinflusst die Präzision der Verschiebestrecke die Zeitauflösung des Experiments nicht.

Justierstrecke Da sich die Lage und Richtung des Laserstrahlbündels nach den Kompressoren mit jedem Aus- und Einschalten des Lasersystems ändern kann, muss die Justage des kompletten Anregearms jedes Mal überprüft und die Einkopplung in den Anregearm gegebenenfalls neu justiert werden. Eine Justierstrecke soll dies möglichst schnell und einfach ermöglichen. Für eine ausreichende Genauigkeit am Probenort, muss die Justierstrecke im Prinzip mindestens so lang wie der komplette Anregearm (ca. 9 m) sein. Das ist aber aus Platzgründen nicht möglich. Deswegen wurde nach der ersten Blende ein Teleskop in die Blendenstrecke eingebaut. Es verkleinert den Bündeldurchmesser um den Faktor 10 und verstärkt gleichzeitig jede Richtungsänderung der Laserstrahlachse um den gleichen Faktor. So lässt sich mit dem 50 cm langen Teleskop zuzüglich einer 1,7 m langen Justierstrecke nach dem Teleskop die gleiche Genauigkeit erreichen wie mit einer 17 m langen Justierstrecke.

5.2.2 Röntgenfokussierung

Eine lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle erzeugt K_α -Strahlung naturgemäß ungerichtet. Die Strahlung breitet sich in alle Raumrichtungen isotrop aus. Die relativ niedrige Photonenzahl zusammen mit der begrenzten Dauer eines kontinuierlichen Betriebs der Anlage (Debris, Kupferbandlänge) macht deswegen eine Fokussierung notwendig, um ausreichend viele Röntgenphotonen in einem Beugungsexperiment detektieren zu können.

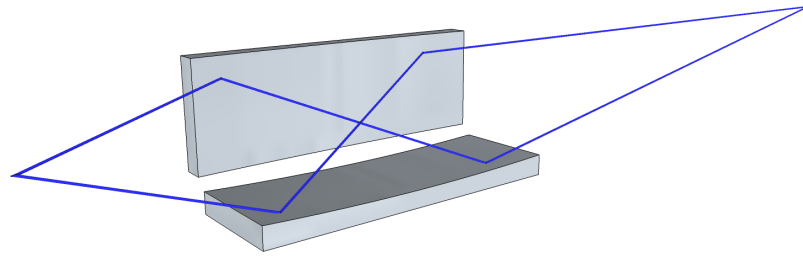


Abbildung 5.4: Strahlengang in einer Montel-Röntgenoptik. Nur Strahlung der Röntgenquelle (links), die über beide elliptisch gebogene Spiegel läuft, erreicht den Fokus (rechts). Dabei fokussiert der eine Spiegel die Strahlung in der Horizontalen, der andere in der Vertikalen. Die Strahlung wird dabei in Richtung der Winkelhalbierenden zwischen den Oberflächennormalen der Spiegel abgelenkt.

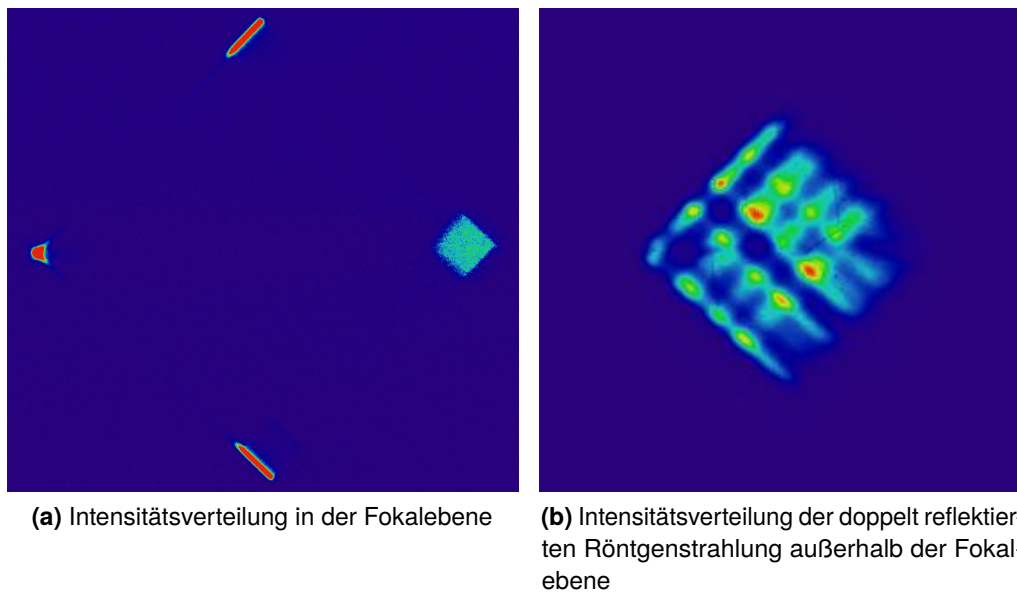


Abbildung 5.5: Intensitätsverteilung der Röntgenstrahlung nach der Montel-Optik. Bild (a): Rechts im Bild ist Röntgenstrahlung, die vorbei an den Spiegeln und durch Ein- und Austrittsfenster des Gehäuses die direkt von der Quelle kommt. Die Linien oben und unten sind Röntgenstrahlung, die je von nur einem Spiegel reflektiert wurde. Links ist der Fokus der Optik, die Strahlung dort wurde von beiden Spiegeln der Röntgenoptik reflektiert. Bild (b): Intensitätsverteilung außerhalb der Fokalebene der Röntgenstrahlung, die von beiden Spiegeln reflektiert wurde. Die Strukturierung ist durch den Fertigungsprozess der Röntgenoptik bedingt. In der Fokalebene überlagern sich die einzelnen Maxima zu einem einzelnen Fokus.

Parameter	Wert
Aufsammelwinkel	2,5°
Konvergenzwinkel	0,7°
Horizontaler Ablenkwinkel	4,7°
Arbeitsabstand	50 mm
Distanz Quelle zu Spiegelmitte	125 mm
Distanz Quelle zu Fokus	500 mm
Länge der Optik	150 mm
Vergrößerung	3
Reflektivität (insgesamt)	0,6
Abbildbare Quellgröße	90 μm

Tabelle 5.1: Parameter der Röntgenoptik ELM31 von INCOATEC wie vom Hersteller angegeben.

Dafür existieren verschiedene Möglichkeiten: toroidal gebogene Germaniumkristalle, Multilayer-Montel-Optiken, ellipsoide Kapillaren und Polykapillaren (siehe Bar05).

Die Prinzipien der ersten beiden beruhen auf Bragg-Reflexion, während die Kapillaren mit totaler interner Reflexion arbeiten. Die Optiken unterscheiden sich in Fokusgeometrie, Aufsammelwinkel, Arbeitsabstand und Vergrößerung und wirken sich verschieden auf die zeitliche Form des Impulses aus. Im hier beschriebenen Aufbau wurde eine Montel-Optik verwendet. Von den verschiedenen Optiktypen hat sie die höchste Flächenleistungsdichte im Fokus. Ihre Winkelleistungsdichte bei moderatem Vergrößerungsfaktor ist ebenfalls vergleichsweise gut. Ihre zeitliche Impulsverbreiterung liegt im Bereich weniger Femtosekunden. [Bar05]

Der Strahlengang in der Optik ist in Abbildung 5.4 skizziert. Die Röntgenstrahlung läuft über zwei senkrecht zueinander stehende, elliptisch gebogene Substrate. Die Substrate sind so beschichtet, dass bei korrekter Justage die Bragg-Bedingung für K_α -Strahlung von Kupfer über die gesamte Länge des Substrats erfüllt ist. Jedes dieser beschichteten Substrate wirkt deswegen als elliptischer Spiegel für Röntgenstrahlung, der die Strahlung in einer Dimension fokussiert (Linienfokus). Die Spiegel sind senkrecht zueinander montiert, so dass Strahlung, die von beiden Spiegeln reflektiert wird, zu einem Punkt fokussiert wird. Die fokussierte Strahlung nach der Optik wird um etwa 4,7° in Richtung der Winkelhalbierenden zwischen den Oberflächennormalen der Spiegel abgelenkt. Im hier beschriebenen Experiment sind die Spiegel so montiert, dass sie die Strahlung horizontal ablenken. Abbildung 5.5a zeigt ein typisches Bild aus der Fokalebene der Röntgenoptik, Abbildung 5.5b die typische strukturierte Intensitätsverteilung der doppelt reflektierten Strahlung außerhalb der Fokalebene. Die Parameter der Optik sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Um die Optik justieren zu können, sind beide Spiegel um eine Achse parallel zu ihrer kürzeren Kante verkippter (siehe Abbildung 5.4). Außerdem ist die gesamte Optik auf einem xyz-Verschieber montiert. Alle fünf Freiheitsgrade sind fernsteuerbar, da die

Optik bei laufender Röntgenerzeugung nicht zugänglich ist. Zur Justage wird die Optik zunächst grob ausgerichtet. Anschließend optimiert man die Verkipfung der Spiegel. Dann muss der optimale Arbeitsabstand gefunden werden, indem man die Entfernung zur Quelle ändert, die Verkipfung nachjustiert und mit der vorherigen Einstellung vergleicht. Indikatoren einer optimalen Justage sind dabei eine hohe Intensität im Fokus und damit einhergehend möglichst viele Linien in der Intensitätsverteilung der fokussierten Röntgenstrahlung außerhalb der Fokalebene (wie in Abbildung 5.5b). Letztere weisen auf eine optimale Ausleuchtung der Spiegel hin, da das Linienmuster durch fertigungsbedingte Stufen in der Multilayer-Beschichtung entlang der Spiegel erzeugt wird.

5.2.3 Probenpositionierung

Nach der Justage der Röntgenoptik liegt die Position des Fokus im Raum fest. Die Probe muss daher an den Ort des Fokus bewegt werden. Zusätzlich muss die Probe für Diffraktionsexperimente auf weniger als ein Zehntel Grad genau orientiert werden können. Diese exakte Rotation gewährleistet ein Goniometer (X-HUBER, Typ 408). Die Probe ist im Drehpunkt des Goniometers gehalten. Das Goniometer selbst wird wiederum durch einen Linearverschieber und eine Hebebühne positioniert. Sie verschieben es senkrecht zur Richtung der fokussierten Röntgenstrahlung horizontal und vertikal. Längs der Strahlungsrichtung genügt eine grobe Positionierung, da die Probe nicht direkt im Fokus stehen muss. Auch die Probenpositionierung muss wie die Röntgenoptik komplett fernsteuerbar sein, um Strahlexposition der Experimentatoren zu vermeiden.

5.3 Bestimmung des zeitlichen Nullpunkts

Der zeitliche Nullpunkt ist dadurch definiert, dass die Maxima von Anrege- und Abtastimpuls gleichzeitig den Probenort erreichen. Der Nullpunkt ist bei Anrege-Abtast-Experimenten eine kritische Größe. Für eine zuverlässige Interpretation der Messdaten ist es erforderlich zu wissen, welche Verzögerung zwischen der Anregung der Probe und ihrer Reaktion auf die Anregung besteht.

Die Stabilität des Nullpunkts, der sogenannte *Jitter*, limitiert die zeitliche Auflösung des Systems zusätzlich zur Impulsdauer. Kommen Anrege- und Abtastimpuls aus dem selben Lasersystem, liegt aber selbst bei Laserimpulsdauern von einigen 10 fs der Jitter erfahrungsgemäß deutlich unter der Impulslänge.

Die absolute Bestimmung des Nullpunkts ist bei lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen nicht trivial. Es existieren einige Methoden für andersartige Röntgenquellen (Synchrotrons, Freie-Elektronen-Laser, gepulste Röntgenröhren), die aber entweder für lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen nicht geeignet sind, kommerziell nicht erhältliche Halbleiterheterostrukturen benötigen, oder experimentell nur sehr aufwendig in einen XRD-Aufbau zu integrieren sind [Gah08, Krä09, Glo10, Kor07]. Deswegen wurde der

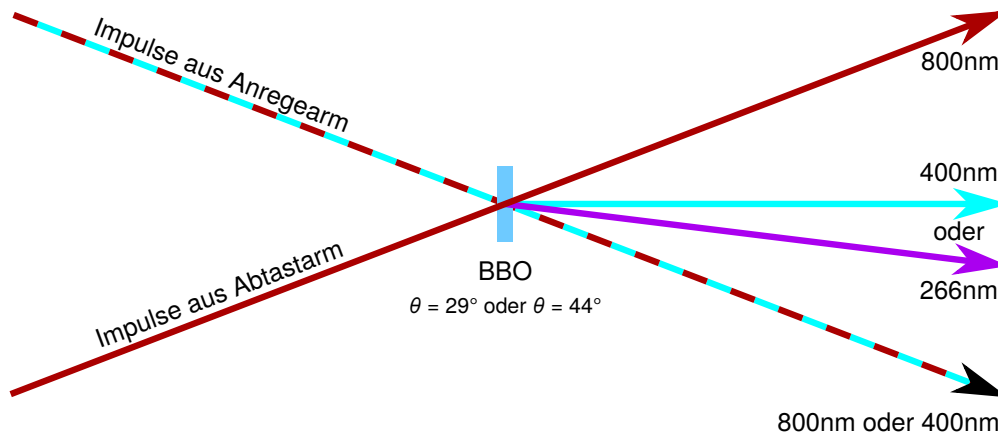


Abbildung 5.6: Nullpunktbestimmung mit Hilfe der Summenfrequenzerzeugung. Impulse des Abtastarms (800 nm) bilden die Summenfrequenz mit Impulsen des Anregearms (800 nm oder 400 nm). Die entstehenden Summenfrequenzimpulse haben eine Wellenlänge von 400 nm bzw. 266 nm und verlassen den Kristall zwischen den beiden ursprünglichen Impulsen. Wenn Anrege- und Abtastimpuls genau gleichzeitig ankommen, ist die Intensität der erzeugten Summenfrequenzimpulse maximal.

zeitliche Nullpunkt in der vorliegenden Arbeit mit rein optischen Methoden bestimmt. Kupferband und Röntgenoptik wurden dafür entfernt, so dass der Laserimpuls, der sonst Röntgenstrahlung erzeugt, mit dem Anregeimpuls gekorreliert werden konnte. Die Kreuzkorrelation wurde mittels Summenfrequenzerzeugung in einem BBO-Kristall durchgeführt.

Der Aufbau ist in Abbildung 5.6 skizziert. Die beiden Impulse überlappen sich im BBO-Kristall am Probenort im spitzen Winkel. Wenn Anrege- und Röntgenerzeugungsimpuls beide eine Wellenlänge von 800 nm haben und gleichzeitig den Kristall erreichen, erzeugen sie dort Licht mit einer Wellenlänge von 400 nm. Wird ein Anregeimpuls mit einer Wellenlänge von 400 nm verwendet, hat das erzeugte Licht eine Wellenlänge von 266 nm.

Das Maximum der Summenfrequenz-Impulse findet man am besten, indem man die Frequenzverdopplung erst mit dem Auge auf einem Schirm beobachtet. Sieht man dort die ersten frequenzverdoppelten Impulse (wie in Abbildung 5.7), muss ihre Intensität mit einer Diode maximiert werden. Das Maximum der Summenfrequenz-Impulse findet man am besten, indem man die Frequenzverdopplung erst mit dem Auge auf einem Schirm beobachtet. Sieht man dort die ersten frequenzverdoppelten Impulse (wie in Abbildung 5.7), muss ihre Intensität mit einer Diode maximiert werden.

Bei einer Anregungswellenlänge von 800 nm: Für die Summenfrequenzerzeugung bei zwei Impulsen mit 800 nm ist ein BBO-Kristall mit $\theta = 29^\circ$ und $\phi = 0^\circ$ von etwa 0,5 mm Dicke geeignet. Der BBO-Kristall wird so vorjustiert, dass beide Impulse im Kristall ihre zweite Harmonische (400 nm) erzeugen. Zum Finden des Nullpunkts lässt



Abbildung 5.7: Summenfrequenzzerzeugung aus Impulsen mit 800 nm und 400 nm Wellenlänge. Von links nach rechts sieht man auf einen Bildschirm treffend die Impulse mit 400 nm des Anregearms, die Summenfrequenz-Impulse mit 266 nm und die Impulse mit 800 nm des Abtastarms.

man den Linearverschieber der Verzögerungsstrecke langsam durchfahren, bis auf der Winkelhalbierenden ebenfalls Licht (mit einer Wellenlänge von 400 nm) erscheint. Das Maximum der Intensität hiervon definiert den zeitlichen Nullpunkt.

Bei einer Anregungswellenlänge von 400 nm: Für die Kreuzkorrelation von Impulsen mit Wellenlängen von 800 nm und 400 nm wird ein BBO-Kristall mit $\theta = 44^\circ$, $\phi = 0^\circ$ und etwa 0,5 mm Dicke eingesetzt. Um den Kristall für die Erzeugung von Licht mit 266 nm Wellenlänge aus den Wellenlängen 400 nm und 800 nm richtig vororientieren zu können, benötigt man zwei Impulse dieser Wellenlängen, die sich im Kristall zeitlich und räumlich überlappen. Solche Impulse erhält man am einfachsten mit dem BBO-Kristall der zur Kreuzkorrelation bei einer Anregungswellenlänge von 800 nm verwendet wurde ($\theta = 29^\circ$). Dieser BBO-Kristall konvertiert von Impulsen mit einer Wellenlänge von 800 nm einen Teil zu 400 nm. Die Impulse dieser beiden Wellenlängen laufen dann kollinear und überlappen sich zeitlich. Der BBO-Kristall (mit $\theta = 44^\circ$) wird dann so vorjustiert, dass er aus diesen Impulsen möglichst effizient Licht mit einer Wellenlänge von 266 nm erzeugt. Das weitere Vorgehen ist dann analog zur Kreuzkorrelation bei einer Anregungswellenlänge von 800 nm. Der neu erzeugte Impuls mit 266 nm geht dabei nicht in Richtung der Winkelhalbierenden, sondern beträgt etwa ein Drittel des Winkels zwischen Anrege- und Abtastimpuls (siehe Abbildung 5.6 und 5.7).

Fehlerabschätzung: Der mit dieser optischen Kreuzkorrelation gefundene Nullpunkt weicht systematisch vom echten Nullpunkt zwischen Anrege- und Röntgen-Abtastimpuls ab. Der größte Beitrag zu dieser Abweichung kommt vom Strahlengang in der Röntgenoptik. In der Horizontalen verursacht die Röntgenoptik eine Ablenkung um $4,7^\circ$. Das führt zu einer Verzögerung von etwa einer Pikosekunde. Um diesen Effekt zu kompensieren, wird zur Messung der optischen Kreuzkorrelation an die Stelle der Röntgenoptik

ein Spiegel montiert, der das Laserstrahlbündel ebenfalls um diesen Winkel ablenkt. So lässt sich der Effekt größtenteils kompensieren. Zusätzlich tritt eine Verzögerung in der Vertikalen auf. Die Röntgenstrahlung beschreibt hier einen Zickzackkurs (siehe Abbildung 5.4), der eine Verzögerung um mehrere Pikosekunden verursachen kann. Da der genaue Strahlengang innerhalb der Optik nicht genau bekannt ist, können nur grobe geometrische Überlegungen vorgenommen werden, um die maximale Verzögerung abschätzen zu können. Als eine Obergrenze kann man so etwa 35 ps angeben. In der Praxis fallen die Abweichungen aber deutlich niedriger aus.

Die durch die Röntgenoptik verursachte Nullpunktverschiebung ist weitgehend unabhängig von ihrer genauen Justage. Dadurch kann der tatsächliche Nullpunkt einmalig durch ein Experiment mit einer Probe bestimmt werden, deren Verhalten bei TRXRD-Experimenten bekannt ist. Bei Gallium-Arsenid ist im Bragg-Reflex nach der Anregung mit einem intensiven Laserimpuls eine Schockwelle zu beobachten, deren Signal mit einer Zeitkonstante von einigen zehn Pikosekunden ansteigt [Ros99, Cav01]. Je nach Signal-Rausch-Verhältnis des gemessenen Anstiegs lässt sich damit der Nullpunkt auf wenige Pikosekunden genau bestimmen (siehe Abschnitt 5.7.3).

5.4 Referenzierung

Der Röntgenfluss einer lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle mit niedriger Wiederholrate schwankt relativ stark. Die RMSE-Werte liegen im Bereich von 5 bis 10 Prozent (siehe Abschnitt 4.8). Zum Erreichen einer ausreichenden Genauigkeit muss jede Messung deswegen referenziert werden. Die Referenz muss dabei zeitgleich mit dem Signal erfasst werden. Dazu bieten sich mehrere Methoden und verschiedene Detektoren an. Als Detektoren wurden Si-pin-Dioden (siehe Abschnitt 3.3.1), eine Ionisationskammer und die CCD-Kamera, die auch den Bragg-Reflex aufnimmt, eingesetzt.

Theoretisch wird die Röntgenstrahlung isotrop emittiert, das heißt in alle Richtungen gleichermaßen und mit gleichem Spektrum. Es zeigte sich jedoch, dass die Korrelation von der Positionierung der Detektoren abhängt. Die einfachste Methode, mit einer Diode den Röntgenfluss an einer beliebigen Stelle als Referenz zu messen, lieferte deswegen nur unbefriedigende Ergebnisse.

Daher wurde versucht, den Röntgenfluss nach der Röntgenoptik mit der Ionisationskammer (siehe Abschnitt 3.3.1) zu messen. Wünschenswert wäre es dabei, nur die in den Fokus laufenden Anteile der Strahlung zu detektieren, nicht aber die unfokussierten (siehe Abb. 5.5a). Das ist aber aus geometrischen Gründen nicht möglich ohne den Winkel zwischen Anrege- und Abtastimpuls deutlich zu vergrößern. Deswegen wurde die Ionisationskammer nah an der Röntgenoptik platziert. Die in diesem Fall mit detektierten unfokussierten Anteile der Röntgenstrahlung verschlechtern aber die Korrelation zwischen Fokus und Referenz. Außerdem ist das Signal-Rausch-Verhältnis der Ionisationskammer deutlich schlechter als das der anderen Detektoren. Diese Methode des Referenzierens lieferte daher ebenfalls unbefriedigende Ergebnisse.



Abbildung 5.8: Typisches CCD-Bild bei HOPG-referenzierter Röntgenbeugung. Links im Bild ist der stärkere und breitere Bragg-Reflex von HOPG zu sehen, der als Referenz dient, rechts der Reflex der GaAs-Probe. Der Bereich im Rechteck ist verstärkt dargestellt.

Die besten Ergebnisse ließen sich erzielen, wenn auf die gleichen Anteile der emittierten Strahlung referenziert wird, mit denen auch gemessen wird. Dazu kann ein Teil der fokussierten Röntgenstrahlung vor der Probe aus dem eigentlichen Strahl heraus reflektiert werden. Als Strahlteiler dient hier HOPG (hoch-orientiertes pyrolytisches Graphit). Es hat eine relativ hohe Transparenz für Cu- K_α -Strahlung (Eindringtiefe ca. 1 mm) und einen Bragg-Reflex von der $\{002\}$ -Ebenenschar mit $26,6^\circ$ Ablenkwinkel (2θ) und hoher Reflektivität [Wyc63, HGD93]. Dadurch, dass es sich einfach und dünn spalten lässt, lassen sich Reflektivität und Transmission aneinander angleichen. Wenn untersuchte Probe und HOPG-Referenz einen nicht zu unterschiedlichen Ablenkwinkel haben, lassen sich ihre Reflexe auf der gleichen CCD-Kamera detektieren, wie es in Abbildung 5.1 dargestellt ist. Das trifft sowohl für Reflexe vieler Halbleiter als auch auch für die einiger Kristalle aus organischen Molekülen zu. Ein typisches Bild mit Gallium-Arsenid als Probe ((111) -Reflex bei $2\theta = 27,3^\circ$) und HOPG als Referenz ((002) -Reflex bei $2\theta = 26,6^\circ$) zeigt Abbildung 5.8.

Auch bei dieser Methode ist es aber nicht ohne Weiteres sicher gestellt, Strahlung wirklich identischen Ursprungs in HOPG- und Probenreflex zu erhalten. Ursache ist der Konvergenzwinkel der Röntgenstrahlung und die unterschiedliche Breite der Rockingkurven von HOPG und der Probe. Der Konvergenzwinkel ist mit $0,7^\circ$ größer als die Rockingkurven von HOPG und allen im Rahmen dieser Doktorarbeit untersuchten Kristallen. Der reflektierte Winkelbereich der Strahlung wird also durch die Rockingkurven bestimmt. Da die Rockingkurve von HOPG größer ist als die der untersuchten Proben, gelangt immer auch Strahlung aus Winkelbereichen in den Referenzreflex, die nicht zur Intensität im Reflex der Probe beitragen. Das verschlechtert wiederum die Korrelation zwischen Proben- und Referenzreflex. Bei sehr ungünstiger Justage kann die Strahlung in beiden Reflexen sogar aus vollständig verschiedenen Winkelbereichen stammen. Dieser Problematik wurde im Rahmen dieser Arbeit mit zwei verschiedenen Methoden begegnet: durch einen Spalt nach der Röntgenoptik, um den Konvergenzwinkel zu verkleinern und durch das nachträgliche Optimieren des zur Referenzierung

von der Auswertungssoftware genutzten Bereichs des HOPG-Reflexes (im Folgenden *Softwareoptimierung* genannt).

Bei der Spaltmethode wird nach der Justage des Probenkristalls ein Spalt in den Strahlengang eingebracht. Dieser wird dann sukzessive verkleinert und verschoben, bis er beginnt die äußeren Bereiche des Probenreflexes abzuschwächen. Damit ist der Konvergenzwinkel der Röntgenstrahlung nach dem Spalt an die Rockingkurve des Probenreflexes angepasst. Somit ist sichergestellt, dass nach dem Spalt nur noch Strahlung vorhanden ist, die auch tatsächlich von der Probe reflektiert wird. Der Referenzreflex enthält damit nur noch Strahlung aus Winkelbereichen, die zum Signal beitragen. Diese konzeptionell einfache Methode hat aber den Nachteil, dass sie den Justageaufwand für jede Messung stark erhöht. Wegen der beschränkten Laufdauer eines Experiments muss deswegen die Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnis durch diese Methode gegen seine Verschlechterung durch die verkürzte Messzeit abgewogen werden.

Einfacher ist die Methode der Softwareoptimierung. Bei der Auswertung (siehe Abschnitt 5.5) wird vom Referenzreflex nur ein schmaler Streifen verwendet, der einem engen Winkelbereich der einfallenden Röntgenstrahlung entspricht. Die Position des Streifens wird dann schrittweise über den gesamten Referenzreflex verschoben. Der Streifen, mit dem die referenzierten Messpunkte vor einer bestimmten Verzögerung (z. B. 0 ps) das geringste Rauschen aufweisen, wird dann als optimierte Referenz verwendet. Die Softwareoptimierung ist im Gegensatz zur Spalt-Methode grundsätzlich nicht in der Lage, eine Fehljustage mit vollständig disjunkten Winkelbereichen in Proben- und Referenzreflex zu vermeiden. Ein weiteres Problem ist, dass ausreichend Datenpunkte vorhanden sein müssen auf welche die Referenz optimiert werden kann. In der Praxis hat sich die Softwareoptimierung trotz dieser Nachteile als effektiver erwiesen, um verlässlich Daten zu produzieren.

Bei manchen Messungen ist jedoch die HOPG-Referenzierung mit CCD-Kamera nicht möglich. Das ist beispielsweise bei Transmissionsmessungen der Fall. Der Winkel zwischen transmittierter Röntgenstrahlung und Referenz ist dann so groß, dass die CCD-Kamera nicht beide Reflexe gleichzeitig detektieren kann. In diesem Fall gibt es eine weitere Methode, die ebenfalls befriedigende Ergebnisse liefert: Referenzierung auf die Röntgenstrahlung, die nur über einen Spiegel der Röntgenoptik gelaufen ist (*Single-Bounce-Referenzierung*). Diese Strahlung besteht, wie die im Fokus, ausschließlich aus K_α -Strahlung, ist ihr räumlich sehr nahe und durch die einachsige Fokussierung intensiv genug, um ausreichend Signal auf den Detektoren zu erzeugen. Auch hier wird mit der gleichen CCD-Kamera detektiert, die auch den Probenreflex aufnimmt. Eine typische Aufnahme zeigt Abbildung 5.9. Zu den besten Ergebnissen gelangt man hier, wenn man auf den in dieser Abbildung rechten Teil der einmal reflektierten Strahlung referenziert. Der Raumwinkel, aus dem die Röntgenstrahlung dort stammt, liegt direkt neben demjenigen, aus dem die Röntgenstrahlung in den Fokus gelangt.



Abbildung 5.9: Typisches CCD-Bild bei Single-Bounce-referenzierter Röntgenbeugung. Mittig im Bild ist die durch die Probe transmittierte fokussierte Röntgenstrahlung, links ein Bragg-Reflex der Probe und rechts oben die nur von einem Spiegel der Montel-Optik reflektierte Röntgenstrahlung, die zur Referenzierung verwendet werden kann.

5.5 Signalaufbereitung

In diesem Abschnitt werden die Methoden beschrieben, mit denen aus den erfassten Daten mit Hilfe von Hintergrundaufnahmen und der Referenzierung extrahiert wurden. Da bei den hier beschriebenen Messungen Signal und Referenz (HOPG- und Single-Bounce-Referenzierung) immer von der selben CCD-Kamera zeitgleich erfasst wurden, beschränken sich die folgenden Ausführungen auf diesen Fall.

Ausgegangen wird von einer Aufnahme, wie sie Abbildung 5.8 oder 5.9 zeigt. Dazu wurde jeweils die zugehörigen Hintergrundaufnahmen bei laufender Röntgenerzeugung jedoch ohne Bragg-Reflexe aufgenommen. Proben- und gegebenenfalls Referenzkristall mussten dafür soweit verdreht werden, dass die Bragg-Reflexe verschwinden. Das hat gegenüber dem Entfernen der Kristalle den Vorteil, dass die Intensitätsverteilung der gestreuten Strahlung weniger stark verändert wird. Alle Daten werden mit einer Dynamik von 16 Bit als ganze positive Zahlen erfasst. Die Berechnungen erfolgen dagegen alle in Fließkommadarstellung (32 Bit), um Rundungsfehler zu vermeiden und negative Werte nach dem Abziehen des Hintergrunds zuzulassen.

Als erstes wird ein Medianfilter auf Aufnahme und Hintergrund angewendet um durch hochenergetische Partikel sowie defekte „heiße“ Pixel verursachte Signale zu entfernen. Existieren mehrere Hintergrundaufnahmen, wird aus ihnen auch mittels Medianbildung ein einzelner Hintergrund für die weitere Auswertung ermittelt. Anschließend werden drei Regionen (ROIs⁴) definiert: eine mit dem kompletten Probenreflex, eine mit dem Referenzreflex und eine dritte möglichst große, ohne jegliche Reflexe (Skalierungs-ROI).

⁴engl.: *region of interest*

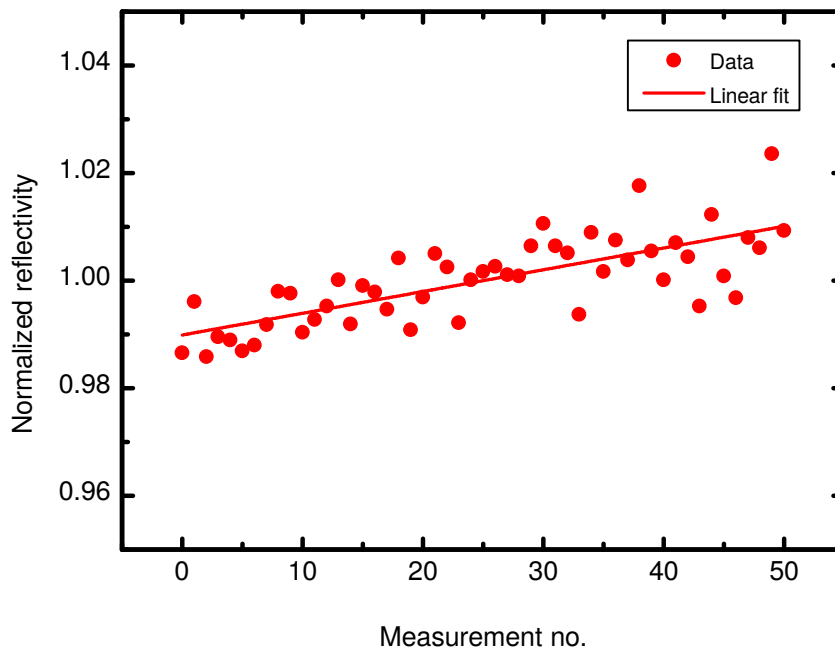


Abbildung 5.10: Nach Aufnahmezeitpunkt sortierter Verlauf einer TRXRD-Messung an DIABN. Der lineare Anstieg ist ein Artefakt und kann durch Anpassen und Abziehen einer Geraden korrigiert werden.

Als nächstes wird für jedes Bild einzeln der Mittelwert der Skalierungs-ROI gebildet. Mit diesen Mittelwerten wird der Hintergrund für jedes Bild dann so skaliert, dass nach dem Abziehen des Hintergrunds der Mittelwert in der Skalierungs-ROI Null ist. Das ist notwendig, da sich die durchschnittliche Röntgenintensität von Aufnahme zu Aufnahme ändert. Die Intensität des Hintergrunds in den Bildern der Reflexe unterscheidet sich also von der Intensität bei der Aufnahme des Hintergrunds alleine.

Signal und Referenz werden dann ermittelt, indem alle hintergrundkorrigierten Werte in der entsprechenden ROI aufsummiert werden. Das referenzierte Signal ergibt sich dann aus dem Quotienten aus Signal und Referenz. Wird über mehrere Messungen gemittelt, wird jede Messung mit ihrer durchschnittlichen Signalstärke gewichtet. So trägt jedes Photon gleichermaßen zur Mittelung bei.

Bei manchen Messungen driftet das referenzierte Signal linear mit dem Aufnahmezeitpunkt unabhängig von der eingestellten Verzögerung. Trägt man die Messpunkte dann in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpuls auf, ergibt sich ein starkes Rauschen. Wenn man die Daten jedoch als Funktion des Aufnahmezeitpunkts betrachtet, findet man eine lineare Zu- oder Abnahme, wie sie in Abbildung 5.10 gezeigt wird. Normiert man die Daten darauf, so lässt sich das Rauschen der Messpunkte

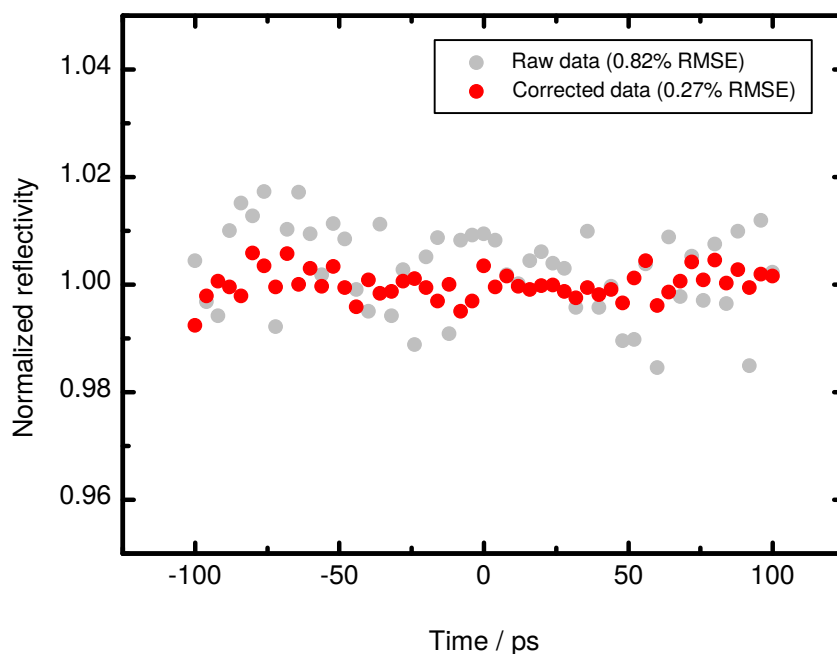


Abbildung 5.11: Nach Verzögerung sortierte korrigierte und unkorrigierte Daten der TRXRD-Messung an DIABN. Die Korrektur des linearen Anstiegs aus Abbildung 5.10 reduziert das Rauschen um den Faktor 3.

(als Funktion der Verzögerung) deutlich reduzieren. Einen Vergleich zwischen den auf diese Weise korrigierten und unkorrigierten Daten am Beispiel einer fsXRD-Messung an DIABN mit verschwindend geringer Signalhöhe zeigt Abbildung 5.11. Zum jetzigen Zeitpunkt ist die Ursache für das Zustandekommen der Zunahme nicht vollständig geklärt. Eine Möglichkeit wäre eine Erwärmung von Proben- oder Referenzkristall und damit verbunden eine Änderung des Debye-Waller-Faktors oder ein Verschieben oder Verdrehen der Kristalle durch thermische Ausdehnung. Erwärmung der Kristalle kann dadurch verursacht werden, dass sich der gesamte Probenraum während einer Messung durch die Abwärme der Detektoren aufheizt. Der Probenkristall wird auch durch die Anregimpulse direkt geheizt. Eine weitere Möglichkeit wäre, dass sich in den Proben durch die Anregungsimpulse Photoschäden akkumulieren, die sich auf die Intensität der Bragg-Reflexe auswirken.

5.6 Messungen an 4-(Diisopropylamino)benzonitril

Elektronentransferreaktionen (ET-Reaktionen) spielen eine fundamentale Rolle in der Chemie und Biochemie, unter anderem bei der Ladungstrennung während der Photosyn-

these. Mit jeder ET-Reaktion geht eine Änderung des molekularen Dipolmoments einher, die strukturelle Änderung der Umgebungsordnung und auch der Reaktanden selbst induzieren kann. Da die durch eine ET-Reaktion erzeugten Zustände sehr kurzlebig sind, spielen sich auch die induzierten Strukturänderungen auf sehr kurzen Zeitskalen ab. Die Kenntnis dieser transienten Strukturen von ET-Reaktionen ist fundamental wichtig für das genaue Verständnis der Reaktionen und deren Modellierung sowie für deren eventuelle Optimierung. Transiente Röntgenbeugungs- und Röntgentransmissionsexperimente bieten wegen ihrer hohen Zeitauflösung im Femtosekundenbereich hierzu einen direkten Zugang. [Bra09]

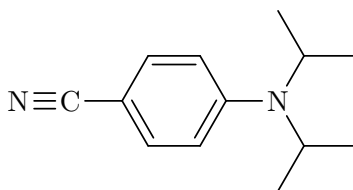


Abbildung 5.12: Strukturformel von DIABN

4-(Diisopropylamino)benzonitril (DIABN, siehe Abb. 5.12) wurde als Beispiel für eine solche ET-Reaktion bereits von Braun et al. [Bra09] am Lehrstuhl für BioMolekulare Optik in Kooperation mit dem Max-Born-Institut Berlin untersucht. An Kristallen aus diesem Molekül wurden sowohl TRXRD-Messungen als auch zeitaufgelöste Röntgentransmissionsmessungen durchgeführt und mit Anrege-Abstast-Experimenten im mittelinfraroten Spektralbereich verglichen. Größe und Vorzeichen der gemessenen Signalamplituden wiesen darauf hin, dass die Signale durch eine Umorientierung der Umgebung jedes angeregten Moleküls dominiert werden. Die Umgebung reagiert dabei auf die veränderte Ladungsverteilung der angeregten Moleküle. Die im Kristall stark ausgerichteten Moleküle werden dadurch in eine isotropere Verteilung gebracht. Die diffuse Streuung des Kristalls ist wegen der ausgerichteten Moleküle normalerweise ebenfalls stark anisotrop und wird durch die Umorientierungen in Richtung des isotropen Falls hin verändert. Der Streuquerschnitt des Kristalls ändert sich je nach Einfallsvektor der Röntgenstrahlung. Beispielsweise erhöht er sich im (0 0 6)-Reflex und verringert sich im (0 0 4)-Reflex. Der sich ändernde Streuquerschnitt wirkt sich mit gleichem Vorzeichen auf die Intensität transmittierter wie Bragg-reflektierter Röntgenstrahlung aus, da auch bei letzterer die Röntgenstrahlung eine gewisse Strecke in den Kristall eindringt. [Bra09]

Die Messungen aus Bra07 und Bra09 sollten nun an der neuen lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle am Lehrstuhl für BioMolekulare Optik durch weitere Messungen ergänzt werden.

Erste Testmessungen

Die ersten an der noch nicht voll optimierten Anlage durchgeführten Testmessungen zeigt Abbildung 5.13. Die Graphen geben die Änderung der Reflektivität des (0 0 6)-

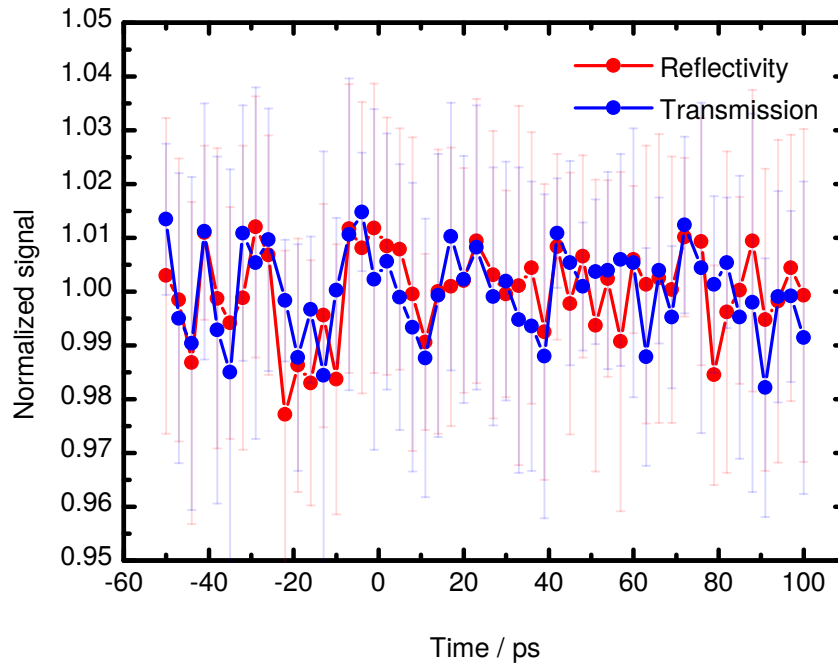


Abbildung 5.13: Erste TRXRD- und Röntgentransmissionsmessung an DIABN im (006)-Reflex. Die Kurven zeigen Mittelwert und Standardabweichung von 11 Messungen. Die Standardabweichungen liegen zwischen 2,5 % und 3,0 %, die Amplitude des Signals bei -20 ps beträgt etwa -2 %. Der RMSE über die Mittelwerte ist kleiner als 0,8 % außerhalb des Signalbereichs.

Braggreflex und der Transmission durch den gesamten Kristall in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpuls wieder. Reflektivität und Transmission wurden an jedem Verzögerungspunkt zeitgleich erfasst. Die Zentralwellenlänge der Anregeimpulse lag bei 400 nm. Die Messungen wurden mit dem Single-Bounce-Verfahren referenziert (siehe Abschnitt 5.4 auf Seite 83). Jeder Punkt stellt den Mittelwert aus 11 Messungen dar, der RMSE jedes Mittelwerts liegt zwischen 2,5 % und 3,0 %.

Reflexion und Transmission haben einen ähnlichen Verlauf. Zwischen -25 ps und -5 ps ist die Intensität des Bragg-Reflexes und der Transmission reduziert. Die Amplitude des Signals beträgt etwa -1 % bis -2 %. Die Form der Signalsignatur mit den anschließenden Oszillationen ist ähnlich zu der von Braun et al. beobachteten. Die Amplitude des Signals ist jedoch um den Faktor 5 schwächer. Zeitlich erscheint das Signal hier etwa 30 ps früher als bei den Messungen von Braun et al. [Bra09]. Diese Unterschiede können folgende Ursachen haben:

Die Signalamplitude hängt direkt von der Anregungsdichte der Moleküle im DIABN-Kristall ab. Diese wird von der Impulsenergie, dem Durchmesser und der Polarisation der Anregeimpulse im DIABN-Kristall bestimmt. Unterschiede dieser Parameter bei den

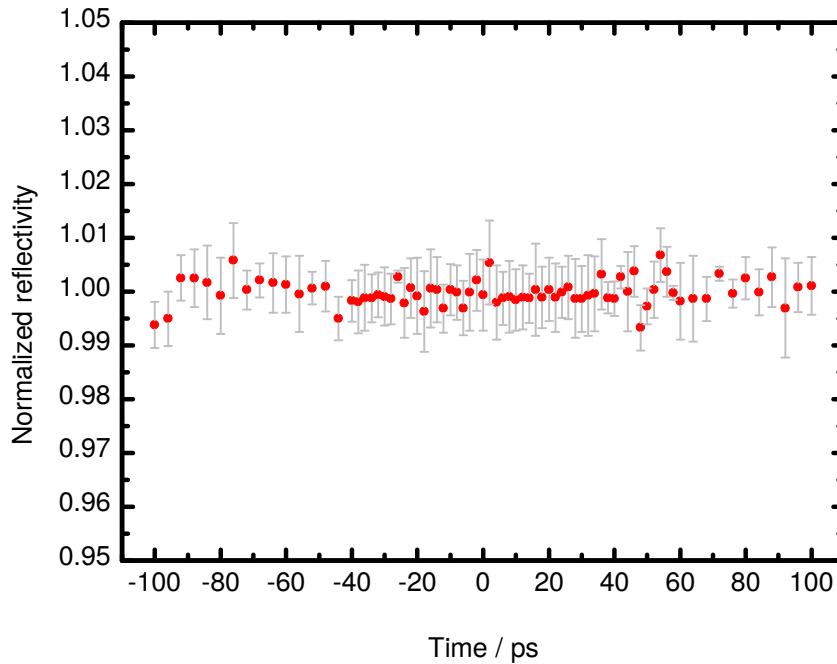


Abbildung 5.14: TRXRD-Messung am DIABN-(006)-Reflex an optimierter Anlage. Mittelwert von 13 Messungen innerhalb einer Woche mit RMSE kleiner als 0,7 %. Der Mittelwert schwankt mit 0,2 %, das Rauschen ist also gegenüber den Messungen an der nicht-optimierten Anlage um den Faktor 4 reduziert.

beiden Experimenten können zu den verschiedenen Signalamplituden führen. Die zeitliche Position des Signals wird durch die Nullpunktbestimmung definiert. Der tatsächliche Nullpunkt kann gegen den optisch bestimmten verschoben sein, da beispielsweise die Röntgenoptik zusätzlichen optischen Weg verursacht (siehe Abschnitt 5.3).

Messungen mit optimierter Anlage

Weitere Testmessungen an DIABN wurden mit der optimierten Anlage durchgeführt. Bei diesen Messungen wurde gegenüber der ersten Testmessung als Debris-Schutz der Hohlkonus anstatt des Plastikband verwendet (siehe Abschnitt 3.2.5) und Linsenabstand und Chirp waren systematisch optimiert worden (Abschnitt 4.3).

Das Ergebnis dieser zweiten TRXRD-Messungen zeigt Abbildung 5.14, das der zeitaufgelösten Transmissionsmessungen Abbildung 5.15. Im Gegensatz zu den ersten Messungen wurde Transmission und Reflexion diesmal nicht gleichzeitig erfasst. Dadurch konnte die TRXRD-Messung mittels HOPG-Reflex referenziert werden, die zeitaufgelöste Transmissionsmessung wurde wieder mit dem Single-Bounce-Verfahren referenziert (siehe Abschnitt 5.4). Beide Graphen zeigen mit einem RMSE von 0,2 % (TRXRD) bzw.

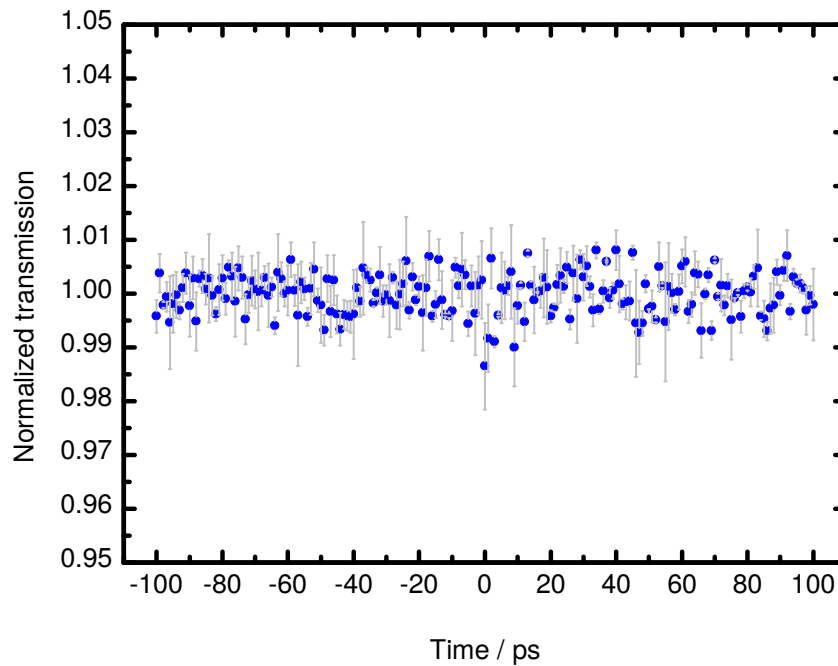


Abbildung 5.15: Röntgentransmissionsmessung an DIABN senkrecht zur (001)-Ebene an optimierter Anlage. Mittelwert aus 3 Messungen mit einmal 0,7 % und zweimal 0,4 % RMSE. Der Mittelwert schwankt mit 0,4 %.

0,4 % (Transmission) ein deutlich reduziertes Rauschen im Vergleich zu den Messungen an der nicht-optimierten Anlage. Jedoch findet sich weder in der Reflexion noch in der Transmission die Signalsignaturen der ersten Testmessung. Im Folgenden sollen nun Mögliche Ursachen für das Ausbleiben des Signals diskutiert werden.

Eine mögliche Erklärung wäre, dass sich Anrege- und Abtastimpuls nicht zuverlässig auf der gleichen Stelle der Probe befunden haben. Die angeregte Fläche ist mit etwa 0,5 mm bis 1 mm Durchmesser ausreichend größer als der Fokus des Abtastimpulses mit weniger als 300 μm . Die Justage quer zur Strahlrichtung erfolgt auf eine Lochblende mit 200 μm Durchmesser und ist damit auf etwa 50 μm genau. Die Positionierung der Probe relativ zur Lochblende erfolgt über den Austausch der Halterung. Diese ist sehr exakt gefertigt, so dass von einer Genauigkeit im Sub-Millimeter-Bereich ausgegangen werden kann. Durch einen Millimeter Versatz zwischen Lochblende und Probe würden sich die Strahlbündel von Anregung und Abtastung um 180 μm gegeneinander verschieben, da sie im spitzen Winkel von etwa 10° aufeinander zu laufen. Fehlender Räumlicher Überlapp zwischen Anrege- und Abtastimpuls auf der Probe kann als Grund für das Ausbleiben des Signals ausgeschlossen werden.

Eine weitere mögliche Ursache wären Fehler bei der Bestimmung des zeitlichen Nullpunkts. Dann könnte das Signal durch das Mitteln verschiedener Messungen mit jeweils neu vorjustiertem Nullpunkt unterdrückt worden sein. Die Nullpunkte wurden durch die in Abschnitt 5.3 beschriebene optische Kreuzkorrelation bestimmt. Dieses Verfahren ist sehr genau (<1 ps). Die systematische Abweichung des tatsächlichen vom optisch bestimmten Nullpunkt kann zwar einige zehn Pikosekunden betragen, sollte aber hauptsächlich durch die Bauart der Röntgenoptik bedingt und daher konstant sein. Eine experimentelle Abschätzung der Genauigkeit der optisch bestimmten Nullpunkte findet sich in Abschnitt 5.7.3.

Eine weitere Erklärung für das Ausbleiben der Signalsignatur wäre, dass sich Photoschäden in den DIABN-Kristallen akkumulieren. Die DIABN-Kristalle wurden zwar vor und nach den Messungen auf ihre optische Klarheit untersucht. Es ist aber auch möglich, dass Schäden im Kristall vorliegen, die rein optisch nicht zu detektieren sind [Woe]. So könnten sich in den Kristallen bereits während dem Einjustieren, aber auch während jeder Messung Photoschäden bilden. Um das auszuschließen soll im Anschluss an diese Arbeit eine Probenhalterung entwickelt werden, die während jeder Messung den Kristall kontinuierlich verschiebt. Mit dieser Probenhalterung und der optimierten Anlage sollten dann Messungen möglich sein, mit denen der Verlauf der ET-Reaktion in DIABN nach optischer Anregung in bisher nicht erreichter Genauigkeit verfolgt werden kann.

5.7 Messungen an Gallium-Arsenid

Eine der Pionierarbeiten im Bereich der TRXRD im Pikosekundenbereich war die Detektion von Schockwellen in Gallium-Arsenid (GaAs) von Rose-Petruck et al. [Ros99]. Die Autoren führten Anrege-Abtast-Experimente an Kristallen durch, in denen sie durch ultrakurze Laserimpulse (mit 800 nm Wellenlänge) Schockwellen induzierten, die sie durch Winkel- und Intensitätsänderungen eines Bragg-Reflexes beobachten konnten. Die Dynamik der Winkeländerungen war an der Grenze des zeitlichen Messbereichs dieser Experimente bei knapp 300 ps bereits abgeschlossen, wohingegen die Intensitätsänderung ein Plateau erreicht hatte.

In diesem Abschnitt werden zunächst die bei diesem Experiment relevanten Prozesse beschrieben. Anschließend werden Messungen vorgestellt, welche die Intensitätsänderung des Bragg-Reflexes unter vergleichbaren Anregungsbedingungen bis zu einer Zeit von 3,5 ns nach der Anregung verfolgen. Abschließend werden Messungen gezeigt bei denen die Anregungswellenlänge von 800 nm auf 400 nm halbiert wurde.

5.7.1 Physikalisches Modell

Photonen mit Energien, die größer als die Bandlücke ($1,424 \text{ eV} \hat{=} 870,7 \text{ nm}$) sind, erzeugen in GaAs durch Interbandanregung heiße Elektron-Loch-Paare. Daran anschließend

können durch Intrabandanregungen weitere Photonen absorbiert werden. Das geschieht in einer dünnen Schicht an der Oberfläche, deren Dicke durch die Eindringtiefe der Photonen bestimmt ist. Innerhalb dieser Schicht fällt die Anzahl der Photonen und damit auch die der erzeugten Elektron-Loch-Paare exponentiell ab.

Die Elektron-Loch-Paare relaxieren innerhalb des Leitungsbandes an die Bandlücke, wobei sie Energie über Phononen abgeben [Cav01]. Dort können sie anschließend unter Emission eines Photons oder durch den Auger-Effekt rekombinieren. Rekombination unter Photonenemission spielt dabei nur eine untergeordnete Rolle, da die typischen Zeitskalen hierbei im Bereich von Nano- bis Mikrosekunden liegen [Tho86], wohingegen der Auger-Prozess im Pikosekundenbereich abläuft [BS04, Ros99]. Durch den Auger-Effekt wird bei jeder Elektron-Loch-Rekombination ein heißes Elektron im Leitungsband erzeugt, das wiederum unter Emission von Phononen relaxiert. So werden zunächst hauptsächlich optische Phononen erzeugt, die dann über verschiedene Zerfallskanäle (Klemens-, Valleé-Bogani- und Ridleykanal) in akustische, überwiegend longitudinale Phononen übergehen [BS02]. Diese Prozesse sind innerhalb einiger Pikosekunden abgeschlossen [BS04, Ros99]. Sie sind daher wesentlich schneller als sich das Material thermisch ausdehnen kann (quasi-isochor).

Dadurch entsteht eine mechanische Spannung im GaAs, die, wie die Anzahl der Elektron-Loch-Paare, ins Innere hinein exponentiell abfällt. Das GaAs dehnt sich daraufhin aus, wodurch Kompressionswellen entstehen, die sich aus der gepumpten Region in alle Richtungen ausbreiten. An der Oberfläche des GaAs wird die Kompressionswelle reflektiert, wobei sie einen Phasensprung erfährt. In das Innere des Halbleiters läuft daher zunächst die Kompressionswelle, gefolgt von einer durch Reflexion erzeugten Expansionswelle. Dahinter bleibt das Material expandiert und besitzt eine erhöhte Temperatur, die sich durch diffuse Transportprozesse langsam equilibriert. Das Material dehnt sich also von der Oberfläche ausgehend ins Innere hinein aus, wobei es an der Expansionsfront zunächst komprimiert wird. Mit TRXRD-Messungen lässt sich der Aufbau dieser Schockwelle verfolgen. Man beobachtet auch, wie sie anschließend aus dem Detektionsvolumen heraus läuft. Dabei tritt ein transienter Anstieg der Gesamtintensität des (1 1 1)-Reflexes auf. [Ros99, Cav01]

Während die Zeitkonstante des Signalanstieg direkt mit den physikalischen Prozessen, die zum Aufbau der Schockwelle führen, verbunden ist, ist die Zeitkonstante des Abklingens ein Maß für die Tiefe, in der sich die Schockwelle gerade befindet. Da die Röntgenstrahlung im Material exponentiell an Intensität verliert, wird das detektierte Signal schwächer, je tiefer die Schockwelle in das Material eingedrungen ist. Das gilt unter der Voraussetzung, dass die Ausdehnung der Schockwelle klein gegen die Detektionstiefe ist und Dispersion auf den untersuchten Zeitskalen zu vernachlässigen ist.

Der Verlauf der Kompression und Expansion lässt sich nach dem Modell von Thomsen et al. [Tho86] quantitativ modellieren. Unter Vernachlässigung der thermischen Diffusion ergibt sich die für die gegebene Situation einzige von Null verschiedene Komponente η_{33} des elastischen Verzerrungstensors, die Dehnung in Richtung der Oberflächennormalen,

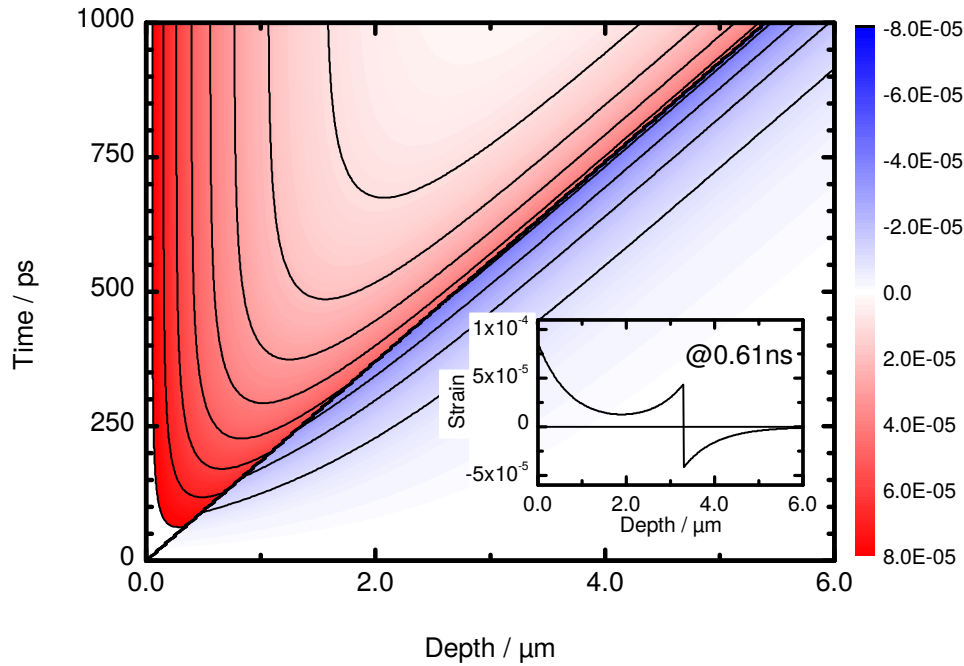


Abbildung 5.16: Dehnung des GaAs senkrecht zur Oberfläche in Abhängigkeit der Tiefe und Zeit. Der Graph veranschaulicht, wie die Schockwelle mit Schallgeschwindigkeit in das GaAs hinein läuft. Der Einsatz zeigt den Verlauf der Dehnung mit der Tiefe nach 0,61 ns.

nach folgender Gleichung. Die darin verwendeten Parameter für GaAs finden sich in Bla82.

$$\eta_{33}(z,t) = (1 - R) \frac{Q\beta}{A\zeta C} \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \left[e^{-\frac{z}{\zeta}} \left(1 - \frac{1}{2} e^{-\frac{vt}{\zeta}} \right) - \frac{1}{2} \frac{z - vt}{|z - vt|} e^{-\frac{|z - vt|}{\zeta}} \right] \quad (5.3)$$

z : Entfernung zur Oberfläche

t : Zeit

ζ : Effektive Eindringtiefe des Anregeimpulses senkrecht zur Oberfläche

v : Schallgeschwindigkeit in GaAs

R : Reflektivität des GaAs für den Anregeimpuls

Q : Energie des Laserimpulses

A : Angeregte Oberfläche

β : Linearer Expansionskoeffizient von GaAs

ν : Poissonzahl von GaAs

C : Wärmekapazität pro Einheitsvolumen von GaAs

Damit lässt sich für gegebene Anregungsbedingungen der Verlauf der Schockwelle berechnen. Das Ergebnis einer solchen Rechnung mit $R = 0.9$, $Q = 10 \mu\text{J}$, $A = 0,1 \text{ mm}^2$ und $\zeta = 0,73 \mu\text{m}$ (bei 20° Einfallswinkel und 800 nm Wellenlänge) zeigt Abbildung 5.16. Der Graph dort gibt an, wie eine Kompressionswelle gefolgt von einer Dehnungswelle mit Schallgeschwindigkeit ins Material hineinläuft. Der Einsatz im Graphen zeigt den typischen Verlauf der Dehnung, nachdem sich die Schockwelle ausgebildet hat: Von der Oberfläche ausgehend fällt die Dehnung exponentiell ab, um dann zur Front der Schockwelle hin wieder anzusteigen. Anschließend folgt der Phasensprung zur Kompression, die dann mit weiter zunehmender Tiefe exponentiell auf Null abfällt.

5.7.2 Auswertung

Nach dem im vorhergehenden Abschnitt vorgestellten Modell, ist die Reflexion R des Bragg-Reflex für GaAs bei gegebener Geometrie der Anregung und Abtastung im Allgemeinen eine Funktion der Anregungsintensität I und der seit der Anregung vergangenen Zeit t . Solange sich die Reflexion $R(I, t)$ nur schwach ändert, lässt sie sich folgendermaßen ausdrücken:

$$\begin{aligned} R(I, t) &\approx \underbrace{R(I=0, t)}_{R_0} + \underbrace{\left(\frac{d}{dI} R(I, t) \right) \Big|_{I=0}}_{R'_0(t)} \cdot I = \\ &= R_0 (1 + \rho(t) \cdot I) \quad \text{mit} \quad \rho(t) = \frac{R'_0(t)}{R_0} \end{aligned} \quad (5.4)$$

Für die weitere Auswertung werden die Daten jeder Messung so normiert, dass sie den Verlauf von $\rho(t)$ wiedergeben, der unabhängig von der Intensität des Bragg-Reflexes und der Anregung ist.

Es wird angenommen, dass der Verlauf von $\rho(t)$ wie folgt zustande kommt: Änderungen von $\rho(t)$ werden durch Änderungen im Kristallgitter verursacht. Die Energie des Anregeimpulses wird relativ zur Zeitauflösung des Experiments schnell im GaAs deponiert und anschließend mit konstanter Rate aufs Gitter übertragen, woraufhin sich eine Schockwelle bildet. Als einfache Näherung kann man dafür einen sprunghafter Anstieg des Signals erwarten, welches dann exponentiell in Sättigung geht, bis die Schockwelle vollständig aufgebaut ist. Dann breitet sich die Schockwelle ins Innere des Halbleiters aus und das Signal fällt wieder ab. Geht man davon aus, dass das Signal hauptsächlich durch die Schockwelle verursacht wird, hängt seine Stärke von der Intensität der Röntgenstrahlung an dem Ort ab, an dem sich die Schockwelle gerade befindet. Da die Röntgenintensität exponentiell mit der Tiefe abnimmt und sich die Schockwelle konstant mit Schallgeschwindigkeit ausbreitet, kann man näherungsweise ebenfalls von einem exponentiellen Abklingen des Signals ausgehen. Nach diesem Abklingen verbleibt ein Offset aufgrund der immer noch erhöhten Temperatur und des expandierten Gitters, der sich erst mit viel größeren Zeitkonstanten abbauen kann.

Unter diesen Annahmen kann der Verlauf von $\rho(t)$ durch folgende Funktion wiedergegeben werden:

$$r(t) = \begin{cases} y_0 & \text{für } t < t_0 \\ y_0 + A \left(1 - e^{-\frac{t-t_0}{\tau_0}}\right) - (A - \Delta y) \left(1 - e^{-\frac{t-t_0}{\tau_1}}\right) & \text{für } t \geq t_0 \end{cases} \quad (5.5)$$

Wird nur der Anstieg oder das Abklingen des Signals erfasst gilt:

$$\text{Anstieg: } r_0(t) = \begin{cases} y_0 & \text{für } t < t_0 \\ y_0 + A \left(1 - e^{-\frac{t-t_0}{\tau_0}}\right) & \text{für } t \geq t_0 \end{cases} \quad (5.6)$$

$$\text{Abklingen: } r_1(t) = y_0 + \Delta y + (A - \Delta y)e^{-\frac{t}{\tau_1}} \quad (5.7)$$

Die Zeitkonstante τ_0 , mit der sich die Schockwelle ausbildet, kann größenordnungsmäßig aus der Eindringtiefe ζ des Anregimpulses senkrecht zur Oberfläche und der Schallgeschwindigkeit v in GaAs berechnet werden. Die Eindringtiefe gibt die Größe des Bereichs an, der nach der Anregung unter Spannung steht. Die aus der Spannung resultierenden Deformationen können sich mit Schallgeschwindigkeit ausbreiten und so die Schockwelle bilden. Daraus erhält man eine charakteristische Zeitkonstante für diesen Prozess von $\tau_0 = \zeta/v$. Die Eindringtiefe ζ senkrecht zur Oberfläche und damit auch τ_0 ist von der Anregungswellenlänge abhängig, deswegen werden konkrete Werte im Folgenden bei der Diskussion der jeweiligen Messung gegeben. Diese Abschätzung gilt nur, wenn der daraus resultierende Wert größer als die Zeitkonstante ist, mit der die Energie von den Elektron-Loch-Paaren auf das Gitter übertragen wird.

Eine Abschätzung der Zeitkonstanten τ_1 für das Abklingen des Signals erhält man aus der Detektionstiefe d und der Schallgeschwindigkeit v mit $\tau_1 = d/v$. Die Schallgeschwindigkeit hat in (1 1 1)-Richtung einen Wert von $v = 5397 \text{ m/s}$ [Bla82]. Die Detektionstiefe ergibt sich aus der Absorptionslänge von Cu- K_α -Strahlung [HGD93] in GaAs und dem Winkel, unter dem der betrachtete Bragg-Reflex auftritt. Im (1 1 1)-Reflex von GaAs sind das 13,65 Grad. Darüber hinaus muss noch berücksichtigt werden, dass die Röntgenstrahlung, um detektiert werden zu können, in das Material hinein und wieder hinaus gelangen muss. Das halbiert die effektive Detektionstiefe. Insgesamt berechnet sich daraus eine Detektionstiefe von $3,3 \mu\text{m}$ und damit eine Zeitkonstante von $\tau_1 = 0,61 \text{ ns}$.

Messungen bei 800 nm Anregungswellenlänge

Abbildung 5.17 zeigt einen Überblick der TRXRD-Messungen an einkristallinem GaAs im (1 1 1)-Reflex bei einer Anregungswellenlänge von 800 nm. Die Messungen wurden noch während der Optimierung der Anlage durchgeführt, die Röntgenerzeugung war daher relativ instabil. Bei jeder Messung wurde die Gesamtintensität des (1 1 1)-Reflex von GaAs in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen Anregung und Abtastung gemessen. Alle Messungen wurden mit HOPG referenziert. Die Messkurven steigen anfangs sehr

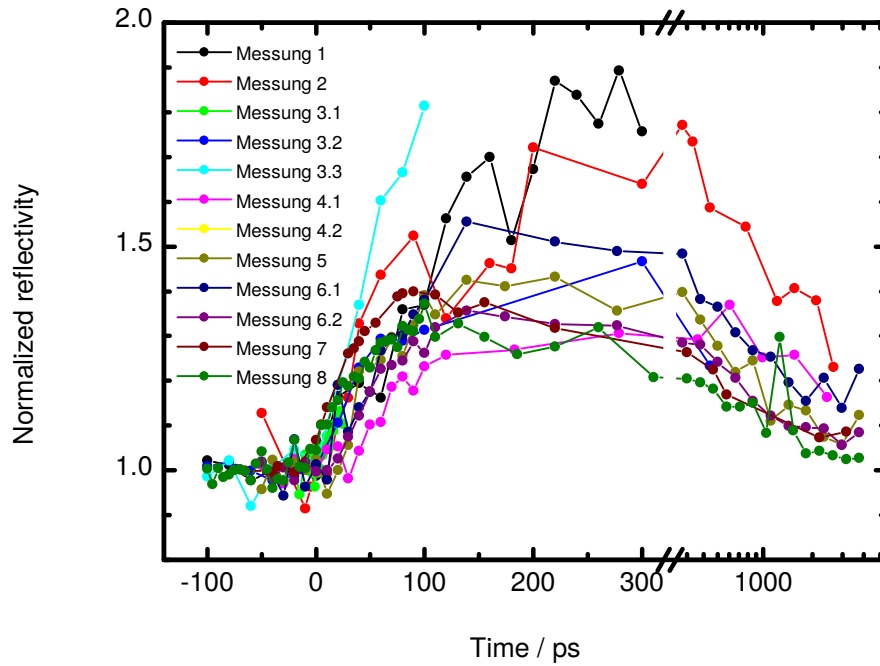


Abbildung 5.17: Überblick über die TRXRD-Messungen an einkristallinem GaAs im (111)-Reflex mit 800 nm Anregungswellenlänge. Die Messungen unterscheiden sich deutlich in ihrer Signalamplitude. Ihr zeitlicher Verlauf ähnlich.

schnell an. Diejenigen, die sich in den Zeitbereich jenseits von 100 ps erstrecken, erreichen nach einigen hundert Pikosekunden ihr Maximum und klingen anschließend mit größerer Zeitkonstante wieder ab. Am Ende verbleibt ein Offset. Die einzelnen Messungen zeigen in einer qualitativen Analyse ähnliche Zeitkonstanten, unterscheiden sich aber in der maximalen Signalamplitude.

Die Messungen wurden normiert, so dass sie den Verlauf von $\rho(t)$ skaliert auf eins normiert wiedergeben. Anschließend wurde an diesen Verlauf für jede Messung einzeln $r(t)$ beziehungsweise $r_0(t)$ angepasst. Die Ergebnisse dieser Anpassungen wurden genutzt, um das Signal-Rausch-Verhältnis und eventuelle systematische Fehler bei den einzelnen Messungen abschätzen zu können. Anhand dieser Abschätzung wurden dann einzelne Messungen mit sehr hohem Rauschen von der weiteren Auswertung ausgenommen.

Aus den konvergierten Anpassungen ließen sich außerdem Korrekturen für die Zeitnullpunkte t_0 der Messungen gewinnen. Die genauen Werte sind Tabelle 5.2 zu entnehmen. Für die weitere Auswertung und Darstellung wurde für jede Messung die Korrektur $t \rightarrow t - t_0$ angewandt. Die Aussage dieser Werte über die Methode zur Zeitnullpunktbestimmung, wird zusammen mit den im Anschluss vorgestellten Messungen bei 400 nm Anregungswellenlänge auf Seite 101 diskutiert.

Messung	t_0/ps
3.1	-1 ± 20
3.2	11 ± 3
5	17 ± 2
6.2	17 ± 3
7	-6 ± 2
8	-8 ± 20

Tabelle 5.2: Aus der Anpassung von $r(t)$ bzw. $r_0(t)$ resultierende zeitliche Nullpunkte t_0 .

Um aus den verbleibenden Daten Zeitkonstanten und Offset zu gewinnen, wurde für alle Messungen die Funktion $r_1(t)$ an das exponentielle Abklingen angepasst. Aus den Anpassungen wurde dann die Mittelwerte für τ_1 und Δy gebildet. Um die Güte der Anpassungen in das Ergebnis mit einzubeziehen wurden die einzelnen Werte mit $1/s_i^2$ gewichtet, dabei stellt s_i die Standardabweichung der jeweiligen Anpassung dar.

Nun wurde an alle Messungen einzeln die Funktion $r(t)$ angepasst, wobei die eben gewonnenen Mittelwerte für τ_1 und Δy sowie $y_0 = t_0 = 0$ nicht mehr variiert wurden. Aus den sich ergebenden Werten für τ_0 wurde wieder ein gewichteter Mittelwert gebildet. Diese Werte für τ_0 , τ_1 und Δy stellen das Endergebnis der Anpassungsprozedur dar und sind in folgender Tabelle zusammengefasst:

Name	Variable	Wert
Anstiegszeitkonstante	τ_0	47 ps
Abklingzeitkonstante	τ_1	612 ps
Offset	Δy	0,12

Abbildung 5.18 zeigt die daraus resultierende Funktion $r(t)$ zusammen mit den zeitnullpunktskorrigierten Messdaten, aus denen die Parameter der Funktion gewonnen wurden. Der Verlauf der Messkurven wird durch die dargestellte Funktion über den gesamten Zeitbereich gut wiedergegeben.

Die Zeitkonstante für das Anklingen des Signals lässt sich wie schon beschrieben aus der Eindringtiefe des Anregimpulses und der Schallgeschwindigkeit in GaAs abschätzen. Die Absorptionslänge beträgt in GaAs bei 800 nm Wellenlänge $1,376 \cdot 10^4/\text{cm}$ [Pal98], der Brechungsindex 3,664 [Zol01]. Unter Berücksichtigung des Brechungsgesetzes ergibt sich daraus eine Eindringtiefe von $0,73 \mu\text{m}$. Der Quotient von Eindringtiefe und Schallgeschwindigkeit, der die charakteristische Zeitkonstante für den Aufbau des Signals gibt, beträgt damit 135 ps. Diese grobe Abschätzung von τ_0 gibt die Größenordnung des gemessenen Wert von 47 ps richtig wieder. Die für das Abklingen des Signals gemessene Zeitkonstante τ_1 von 612 ps stimmt sehr gut mit der oben gemachten Abschätzung von 0,61 ns überein.

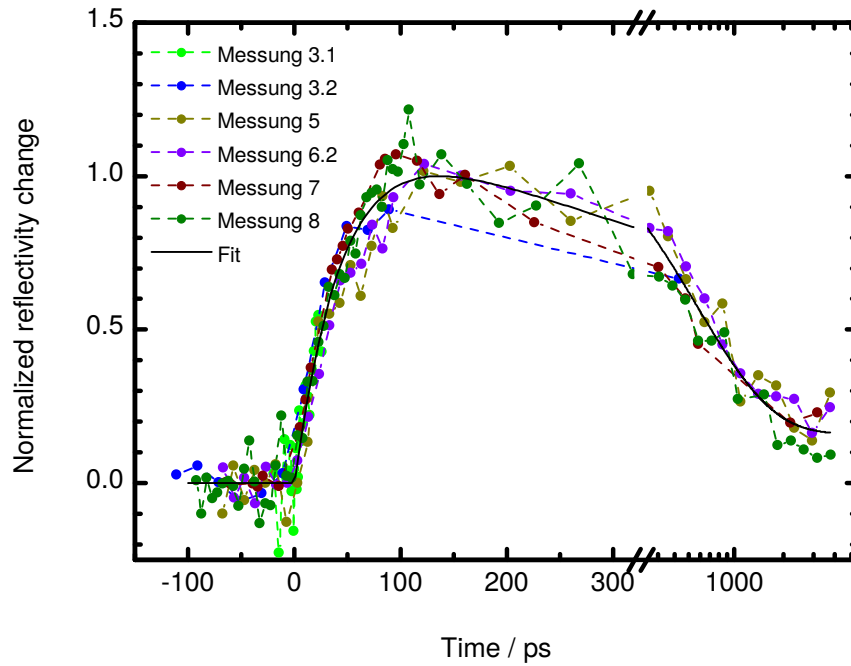


Abbildung 5.18: TRXRD-Messungen an GaAs bei 800 nm Anregungswellenlänge mit angepasster Exponentialfunktion $r(t)$. Mit $\tau_0 = 47$ ps und $\tau_1 = 612$ ps gibt die Funktion den Verlauf der Daten über den gesamten Zeitverlauf gut wieder.

Die absoluten Signalamplituden sind von Form und Amplitude der Schockwelle abhängig und damit von der Intensität der Anregungsimpulse. Die in der Auswertung nicht berücksichtigten Messungen mit stärkerem Rauschen hatten tendenziell höhere Maximalamplituden und sind bei höheren Anregungsintensitäten entstanden. Eine mögliche Erklärung für diesen Zusammenhang ist daher, dass bei diesen Messungen die Intensitäten bereits stark genug waren, um die GaAs-Probe zu schädigen oder Nichtlinearitäten zu verursachen, so dass Gleichung 5.4 nicht mehr gilt. Die bei den Messungen verwendeten Energien liegen im Bereich von 1 mJ/cm^2 bis 20 mJ/cm^2 und damit noch unterhalb aber schon in der Nähe der für das Einsetzen von Schmelz- oder Ablationsprozessen nötigen Intensität von etwa 80 mJ/cm^2 beziehungsweise gut 100 mJ/cm^2 [Cav01]. In der Tat konnte bei einigen Messungen (1, 2) eine Veränderung der Oberfläche mit bloßem Auge erkannt werden. Die Schädigungen könnten erst ab einem gewissen Ausmaß sichtbar werden. Damit besteht die Möglichkeit, dass Schäden auch bei den anderen Messungen mit hohem Signal und großem Rauschen eine Rolle gespielt haben.

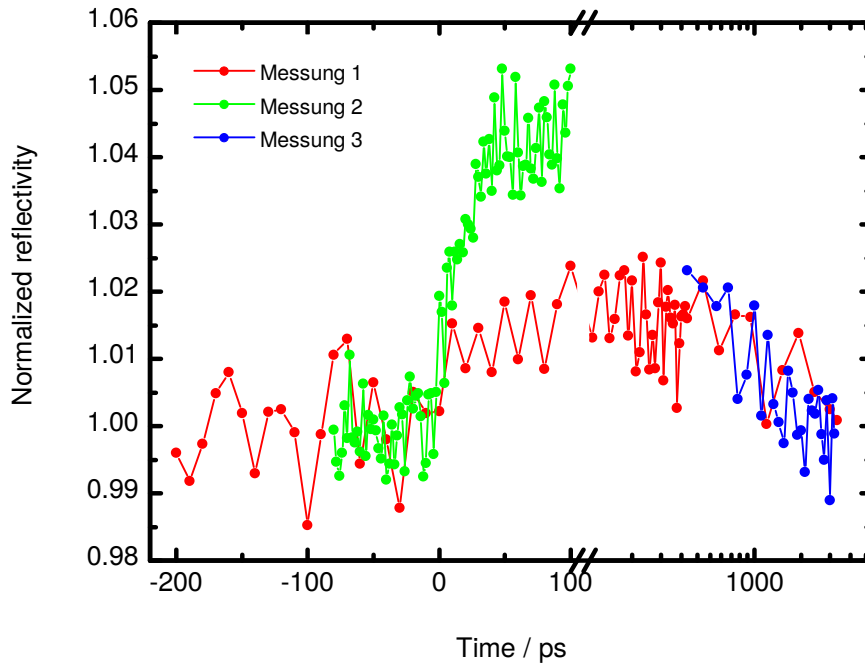


Abbildung 5.19: TRXRD-Messungen an einkristallinem GaAs im (1 1 1)-Reflex mit 400 nm Anregungswellenlänge. Gegenüber den Messungen bei 800 nm Anregungswellenlänge (Abb. 5.19) ist die Signalamplitude deutlich schwächer.

Messungen bei 400 nm Anregungswellenlänge

Die Messungen dieses Abschnitts wurden mit frequenzverdoppelten Anregeimpulsen bei einer Wellenlänge von 400 nm auf der optimierten Anlage durchgeführt. Es wurden drei Datensätze über verschiedene Zeitbereiche erfasst. Sie werden in Abbildung 5.19 gezeigt. Jeweils eine Messung erstreckt sich über den Zeitbereich des Anstiegs beziehungsweise Abklingens des Signals. Eine weitere Messung erfasst den gesamten Zeitbereich in größeren Zeitschritten. Die Daten wurden zeitlich direkt aufeinander folgend erfasst. Zwischendurch wurde der GaAs-Wafer und die Referenz neu einjustiert, wodurch die unterschiedlichen Signalamplituden zustande kamen. Die maximale Änderung der normierten Reflektivität beträgt nur wenige Prozent. Sie sind damit um eine Größenordnung schwächer verglichen zu den Messungen mit 800 nm Anregungswellenlänge. Ihre Erfassung war erst durch die in Abschnitt 4 beschriebene Optimierung der Anlage möglich.

Eine monoexponentielle Anpassung von $r_0(t)$ oder $r_1(t)$ (aus dem vorhergehenden Abschnitt) an die Messungen, die nur Anstieg oder Abklingen zeigen, ergibt Zeitkonstanten von 23(3) ps beziehungsweise 662(250) ps. Die Messung über den gesamten Zeitbereich lässt aufgrund der wenigen Messpunkte und des reduzierten Signal-Rausch-Verhältnis

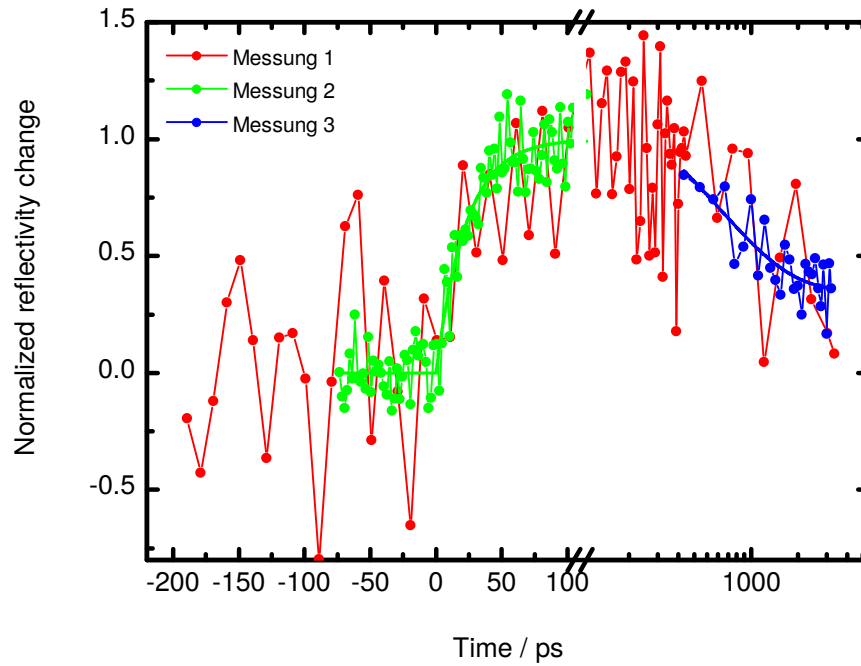


Abbildung 5.20: Skalierte TRXRD-Messungen an einkristallinem GaAs im (1 1 1)-Reflex mit 400 nm Anregungswellenlänge. Die Abbildung zeigt die Daten aus Abbildung 5.19 skaliert und die angepassten Funktionen $r_0(t)$ und $r_1(t)$. Die Anstiegszeitkonstante für Messung 2 beträgt 23(4) ps, die Abklingzeitkonstante für Messung 3 662(250) ps.

keine quantitative Aussage zu. Abbildung 5.20 zeigt die Messungen aufeinander skaliert zusammen mit den jeweiligen Anpassungen.

Die Ergebnisse der Anpassungen sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Die ermittelte Abklingzeitkonstante stimmt im Rahmen der Messgenauigkeit mit der aus den Messungen bei 800 nm Anregungswellenlänge und mit dem auf Seite 95 hergeleiteten theoretischen Wert von 0,61 ns gut überein.

Messung	τ_0/ps	τ_1/ps	t_0/ps
2	23 ± 3	–	-6 ± 2
3	–	662 ± 250	–
Theorie	2,7	610	–

Tabelle 5.3: Ergebnisse der Anpassung von $r(t)$, $r_0(t)$ beziehungsweise $r_1(t)$ an die TXRD-Messungen an GaAs mit 400 nm Anregungswellenlänge.

Die Anstiegszeitkonstante ergibt sich nach der auf Seite 95 beschriebenen einfachen Abschätzung wieder aus der Eindringtiefe der Anregeimpulse senkrecht zur Oberfläche und der Schallgeschwindigkeit. Bei 400 nm hat die Absorptionslänge einen Wert von $6,742 \cdot 10^5$ /cm [Pal98] und der Brechungsindex einen von 4,443 [Zol01]. Die Eindringtiefe beträgt somit 15 nm, daraus erhält man eine Abklingzeitkonstante von 2,7 ps. Diese Abschätzung ist mit dem experimentellen Wert von 23 ps nicht vereinbar. Die kurze Zeitkonstante von 2,7 ps liegt allerdings schon in der Größenordnung der Zeitkonstanten für die Relaxation der Elektron-Loch-Paaren, welche bei der Abschätzung nicht berücksichtigt wurden. Zudem können aufgrund der kürzeren Absorptionslänge und der deutlich höhere Anregungsdichte Effekte eine Rolle spielen, die die Relaxation verzögern oder die Verteilung der Elektron-Loch-Paare beeinflussen. So kann die Absorption bei hohen Intensitäten sättigen und der Anregeimpuls tiefer ins Material eindringen [Gib90, Lee86, MGH00]. Durch die höheren Photonenenergien wird auch *Inter-valley scattering* relevant, wodurch die Rekombinationsraten und damit der Übertrag der Energie auf das Gitter verlangsamt wird [Sha87, Cla12]. Außerdem kommt es zu Screening-Effekten, die ebenfalls die Zerfallsraten von Elektron-Loch-Paare herabsetzen [Lyo86, Leh79]. Desweiteren könnten die vom Anregeimpuls erzeugten Elektronen unter gewissen Umständen zumindest bei tiefen Temperaturen weit in das Material eindringen [BH96, XL99].

Eine weitere Möglichkeit wäre, dass die gemessene Zeitkonstante von der Röntgenimpulsdauer dominiert wird. Bei optimal komprimierten Laserimpulsen ist eine so große Impulsdauer nicht zu erwarten. Aber die Optimierung des Chirps auf maximalem Röntgenfluss verlängert die Impulsdauer, da das Optimum der Röntgenerzeugung nicht bei der kleinsten Laserimpulsdauer liegt (siehe Abschnitt 4.3). Die Form des Signalverlaufs gibt aber Hinweise auf den Prozess, der die Zeitkonstante dominiert. Wenn der Röntgen-Abtastimpuls kurz gegen die beobachtete Entstehung der Schockwelle ist, entspricht die Form des Signalanstiegs $\rho(t)$ den Funktionen $r(t)$ bzw. $r_0(t)$ mit stufenförmigen Beginn des Signalanstiegs. Wenn jedoch der Röntgen-Abtastimpuls die beobachtete Zeitkonstante bestimmen und sich die Entstehung der Schockwelle mit dem theoretischen Wert von wenigen Pikosekunden abspielen würde, hätte $\rho(t)$ bei einem gaussförmigen Verlauf des Röntgen-Abtastimpuls die Form einer gaussischen Fehlerfunktion. Der in Messung 1 und 2 gemessene Anstieg ist aber abrupt und deutet damit auf ersteres Szenario hin, also dass die Zeitkonstante durch das Entstehen der Schockwelle dominiert wird und die Röntgenimpulse dagegen kurz sind.

5.7.3 Bestimmung des Zeitnullpunkts mittels GaAs

Die vorgestellten GaAs-Messungen erlauben, die Genauigkeit des vorjustierten zeitlichen Nullpunkts abzuschätzen und die Abweichung vom echten Zeitnullpunkt zu messen.

Bei 800 nm Anregungswellenlänge streuen die Nullpunktskorrekturen t_0 über einen relativ großen Bereich von -8 ps bis 17 ps (siehe Tabelle 5.2). Der sich aus den Anpassungen ergebende Fehler ist bei vier der sechs Messungen kleiner als 3 ps. Die Genauigkeit des Nullpunkts ist bei diesen Messungen demnach relativ hoch. Das wird qualitativ

bestätigt durch einen Vergleich der nicht nullpunktskorrigierten Daten in Abbildung 5.17 mit den korrigierten in Abbildung 5.18. Die korrigierten Messungen liegen deutlich besser übereinander, auch diejenigen, bei denen die Fehlergrenzen für den Nullpunkt größer sind. Man kann daher schließen, dass der vorjustierte Nullpunkt bis zu maximal 20 ps vom tatsächlichen Nullpunkt abweichen kann, sich die Abweichung aber durch die Anpassung einer passenden Funktion relativ genau quantifizieren lässt.

Bei 400 nm Anregungswellenlänge weicht der aus der Anpassung ermittelte Zeitnullpunkt um $-6(2)$ ps vom optisch bestimmten ab. Die aus dem Fit resultierende Unsicherheit ist in etwa gleich der bei den Messungen bei 800 nm Anregungswellenlänge.

Damit geben Anrege-Abtast-Experimente an GaAs die Möglichkeit, den Zeitnullpunkt mit wenigen Pikosekunden Genauigkeit zu bestimmen. Zur Anregung eignen sich dabei sowohl Laserimpulse mit 400 nm als auch mit 800 nm Wellenlänge. Man kann erwarten, dass auch für alle Wellenlängen zwischen diesen beiden Werten und damit über das gesamte sichtbare Spektrums eine Nullpunktsbestimmung möglich ist.

Die weite Streuung der vorjustierten Nullpunkte liefert auch eine mögliche Erklärung dafür, warum bei den Messungen an DIABN kein Signal beobachtet wurde. Die ermittelten Nullpunkte streuen über einen Bereich von 25 ps. Damit kann die Mittelung über Messungen mit verschiedenen vorjustierten Nullpunkten bei der Auswertung das 20 ps dauernde Signal unterdrückt haben. Das Signal war aber zu schwach war, um ohne Mittelung sichtbar zu sein.

6 Zusammenfassung

Der erste Teil dieser Arbeit hatte die Entwicklung einer lasergetriebenen Plasma-Röntgenquelle zum Ziel, die in Zukunft für Anrege-Abtast-Experimente an organischen Molekülen eingesetzt werden soll. Dazu werden möglichst viele Röntgenphotonen pro Impuls erzeugt, um die Zahl der Anregungsvorgänge und die damit entstehenden Photoschäden in Proben zu minimieren.

Zuerst wurde ein Bandlaufwerk entwickelt, welches das Zielmaterial der Röntgenquelle, eine Kupferfolie, kontinuierlich austauscht. Das Bandlaufwerk ist so ausgelegt, dass es Zielmaterial für Messungen von bis zu 8 Stunden ohne Unterbrechung zur Verfügung stellen kann. Der Einfallswinkel des Laserlichts kann dabei mit nur geringem Justageaufwand variiert werden. Die Stabilität der Bandführung wurde mittels OCT überprüft und ist so hoch, dass Auslenkungen des Kupferbands nicht wesentlich zum Rauschen der Röntgenimpulsenergie beitragen.

Nach der iterativen Optimierung verschiedener Parameter, wie Polarisierung, Einfallswinkel, Chirp und Bündeldurchmesser der Laserimpulse konnten pro Impuls bis zu $3 \cdot 10^{10}$ K_{α} -Photonen pro Sterad mit 10 Hz erzeugt werden. Das ist ein im Vergleich zu anderen Anlagen deutlich verbesserter Wert. Auch die über eine Sekunde integrierte Anzahl an Photonen übertrifft vergleichbare Anlagen. Durch die Verwendung einer Montel-Optik können Photonen aus einem großen Raumwinkel fokussiert werden, so dass die Probe etwa $3 \cdot 10^8$ Photonen pro Impuls erreichen. Bei Röntgenbeugungsexperimenten gelangen davon je nach Probenkristall größenordnungsmäßig 10^6 Photonen auf den Detektor.

Desweiteren wurde eine neuer Debris-Schutz für die Optiken der Röntgenerzeugung entwickelt, da das gängige Verfahren, in dem eine Plastikfolie eingesetzt wird, bei den hier eingesetzten hohen Impulsenergien und großen Laserlichtbündeldurchmessern nicht geeignet ist. Dadurch konnte das Rauschen der Impulsenergie der Röntgenstrahlung von etwa 20 % auf bis zu 5 % RMSE gesenkt werden.

Die lasergetriebene Plasma-Röntgenquelle wurde in ein Anrege-Abtast-Experiment integriert und damit Kristalldynamiken im Pikosekundenbereich untersucht. Hierfür wurde eine Referenzierungsmethode entwickelt, die mittels Bragg-Reflexion an HOPG¹ einen Teil der fokussierten Röntgenstrahlung vor der Probe auf einen Detektor ablenkt. HOPG ist hierfür besonders geeignet, da es sich leicht spalten lässt und sich dadurch die Intensität des Referenzreflexes passend zu Probe und Detektor einstellen lässt. Darüber hinaus hat es eine hohe Röntgentransparenz und ist sehr gut verfügbar. Für die Referenzierung wurde auch eine Software entwickelt, welche die Verwendung der

¹Hoch-orientiertes pyrolytisches Graphit

Referenz bei der Auswertung der gemessenen Daten algorithmisch optimiert. Dadurch kann in den Anrege-Abtast-Experimenten bei einer Messzeit von etwa zehn Minuten pro Datenpunkt ein Rauschen des Signals von weniger als 0,2 % erreicht werden.

Mit diesem Aufbau wurden Testexperimente an DIABN² und Untersuchungen an Gallium-Arsenid durchgeführt. Die Testexperimente befassten sich mit der diffusen Streuung von Röntgenstrahlung in DIABN-Kristallen [Bra07, Bra09]. In DIABN wird durch optische Anregung ein Ladungstransfer induziert, der das Dipolmoment des Moleküls ändert. In Folge dessen reorientieren sich die umgebenden DIABN-Moleküle und beeinflussen so die diffuse Streuung des Kristalls. Dies wirkt sich gleichermaßen auf die Intensität von Bragg-Reflexen wie auf die Transmission aus, da in beiden Fällen die Röntgenstrahlung in den Kristall eindringt. Über mehrere Testmessungen konnte das Rauschen bei solchen Experimenten durch das Optimieren der Anlage von 0,8 % in dieser ersten Messung auf 0,2 % in der Beugung beziehungsweise 0,4 % in der Transmission späterer Messungen reduziert werden. Bei diesen Testmessungen konnte jedoch eine zeitabhängige Änderung der Intensität der Transmission und des Bragg-Reflexes nicht eindeutig detektiert werden. Offensichtlich bilden sich vor und während jeder Messung in den Kristallen Photoschäden, die das Signal reduzieren. Darauf gibt es Hinweise auch aus Messungen an DIABN, die am Max-Born-Institut in Berlin durchgeführt wurden [Roo09, Woe]. Für diese Probe sind also weitere Strategien notwendig. Der nächster Schritt ist daher die Entwicklung einer Vorrichtung, die den Kristall nach jedem Anregevorgang verschiebt, um so das potentiell beschädigte Volumen auszutauschen.

In einem weiteren Experiment wurde die Gitterdynamik von Gallium-Arsenid mittels transientser Röntgenbeugungsexperimente vermessen, nachdem es mit einem ultrakurzen Laserimpuls im Nahinfraroten (bei 800 nm Wellenlänge) angeregt wurde. Diese Dynamik wurde über einen Zeitbereich von 3 ns mit einer Zeitauflösung im Bereich von Pikosekunden verfolgt. In Analogie zu Untersuchungen in der Literatur lassen sich die gemessenen Daten durch Aufbau und Ausbreitung einer Schockwelle interpretieren, die aus dem Detektionsvolumen heraus ins Innere des Halbleiters läuft. Die hohe Zeitauflösung der Ergebnisse erlaubt eine Quantifizierung der Zeitkonstanten für diese beiden Prozesse auf 47 ps beziehungsweise 0,61 ns. Der Anstieg des Signals beinhaltet die Absorption des Laserimpulses durch die Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren und deren Zerfall über verschiedene Kanäle zu akustischen Phononen, die dann die Schockwelle bilden. Die einfache Modellannahme, dass der Aufbau der Schockwelle durch die Tiefe der angeregten Region und die Schallgeschwindigkeit in GaAs bestimmt wird, gibt die richtige Größenordnung für die Anstiegszeitkonstante. Die Zeitkonstante für das Abklingen des Signals lässt sich ebenfalls aus der Schallgeschwindigkeit sowie der Eindringtiefe der Röntgenstrahlung senkrecht zur Oberfläche abschätzen. Man erhält eine Abklingzeitkonstante von 0,61 ns, die sich mit dem gemessenen Wert deckt.

Darüber hinaus wurde dieses Experimente mit einer Anregungswellenlänge im sichtbaren Spektralbereich bei einer Wellenlänge von 400 nm durchgeführt. Die Absorptionslän-

²4-(Diisopropylamino)benzonitril

ge ist bei dieser Wellenlänge etwa um den Faktor 50 kürzer. Die dadurch deutlich höhere Dichte der im Halbleiter deponierten Energie zusammen mit der höheren Photonenenergie führen dazu, dass die Dynamik des Anstiegs durch Effekte dominiert wird, die bei Anregung im Nahinfraroten nicht sichtbar werden. Die gemessenen Zeitkonstanten betragen 23 ps für den Anstieg und 0,66 ns für das Abklingen. Die Abklingzeitkonstante lässt sich analog zur Anregung im Nahinfraroten auf 0,61 ns abschätzen. Dieser Wert stimmt mit dem gemessenen innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Mit den Röntgenbeugungsexperimenten an Gallium-Arsenid wurde eine Methode gefunden, mit der sich der Zeitnullpunkt des Anrege-Abtast-Experiments genau bestimmen lässt. Durch den schnellen Anstieg der Intensität des Bragg-Reflexes nach der Anregung kann er durch die Anpassen einer geeigneten Funktion auf wenige Pikosekunden genau identifiziert werden. Die Methode eignet sich sowohl für 400 nm als auch für 800 nm Anregungswellenlänge. Wie bei der Referenzierung mit HOPG liegt ihr Vorteil darin, dass sie in einem gegebenen Aufbau zur transienten Röntgenbeugung experimentell sehr einfach umzusetzen ist.

A Anhang

A.1 Steuerung des Bandlaufwerks

In diesem Abschnitt wird die Elektronik beschrieben, die das Bandlaufwerk der Röntgenerzeugung steuert. Abbildung A.1 zeigt den den Schaltplan der Steuerung. Die einzelnen Komponenten sind in Tabelle A.1 aufgeführt.

Die Versorgungsspannung V_{cc} beträgt 12 V. Die Spannungen für die Motoren der Spulen werden durch die Spannungsregler IC1 und IC2 erzeugt. Sie lassen sich über die Potentiometer R3 und R4 einstellen. Das bistabile Relais RL1 schaltet die Drehrichtung

Symbol	Bezeichnung	Spezifizierung
C1	Kondensator	1 μ F
C2	Kondensator	1 nF
C3	Kondensator	100 μ F
C4	Kondensator	10 nF
D1	Diode	1N4148
IC1	Spannungsregler	LM317
IC2	Zeitgeber	NE555
LS1	Gabellichtschranke	PM-L44P
Q1	NPD-Transistor	BC239C
R1	Widerstand	2,2 k Ω
R2	Widerstand	22 k Ω
R3	Potentiometer	2,5 k Ω
R4	Potentiometer	1 k Ω
R5	Widerstand	330 Ω
R6	Widerstand	1 k Ω
R7	Widerstand	10 k Ω
R8	Potentiometer	100 k Ω
RL1	Bistabiles 4-poliges Relais	
RL2	Monostabiles 1-poliges Relais	
S1	1-poliger Taster	
S2	2-poliger 3-Wege-Schalter	
S3	2-poliger 2-Wege-Schalter	

Tabelle A.1: Teileliste für die Steuerung des Bandlaufwerks aus Abbildung A.1.

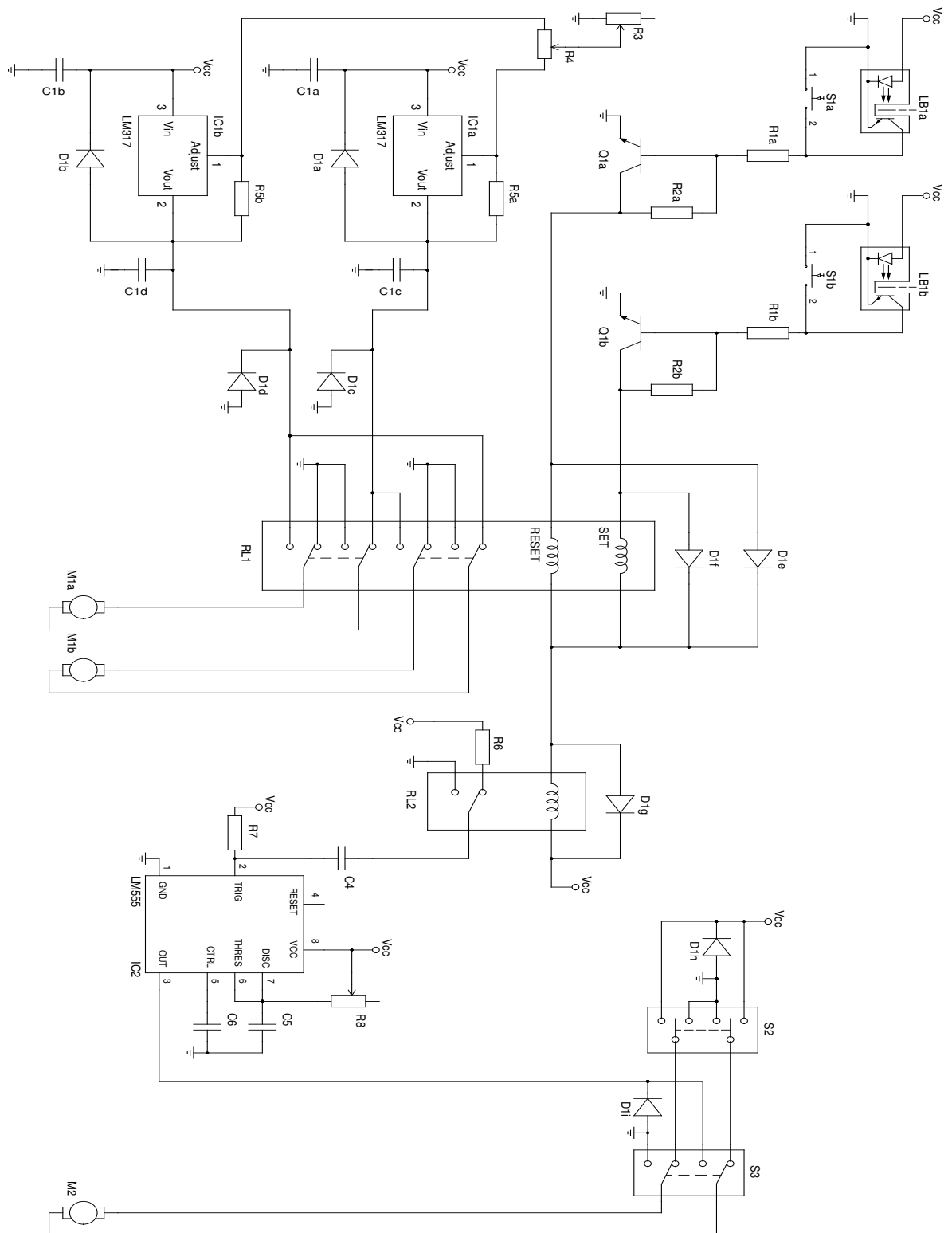


Abbildung A.1: Schaltplan der Steuerung des Bandlaufwerks. Die Teileliste zeigt Tabelle A.1.

der Motoren um und vertauscht gleichzeitig die Spannungsquellen der Motoren. Das monostabile Relais RL2 aktiviert den Zeitgeber IC2, der dann für eine definierte Zeitspanne die Versorgungsspannung an seinem Ausgang anlegt. Diese Zeitspanne lässt sich über das Potentiometer R8 einstellen. Die Lichtschranken LB1a und LB1b schalten die Relais. Da die Schaltströme, welche die Relais benötigen, zu hoch für die Lichtschranken sind, werden sie indirekt über die Transistoren Q1a und Q1b gesteuert, die wiederum von den Lichtschranken geschaltet werden. Mit den Tastern S1a und S1b kann man das Auslösen jeweils einer Lichtschranke simulieren und so einen Laufrichtungswechsel manuell hervorrufen. Schalter S3 steuert, ob der Bandvorschub automatisch bei einem Laufrichtungswechsel erfolgt, oder ob er manuell mit Schalter S2 ausgelöst werden kann. Die Dioden dienen ausschließlich dem Schutz der anderen Komponenten.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Absorption durch inverse Bremsstrahlung in Abhängigkeit des Einfallswinkels und der Plasmaskalenlänge.	11
2.2	Resonante Absorption in Abhängigkeit des Einfallswinkels und der Plasmaskalenlänge.	13
2.3	Inverse Bremsstrahlung und resonante Absorption in einem Plasma mit linearem Dichtegradienten und großer Skalenlänge.	15
2.4	Brunel-Effekt in einem Plasma mit stufenförmigem Dichtegradienten und kleiner Skalenlänge.	16
2.5	Bremsvermögen in Kupfer. Elektronisches, radiatives und totales nach Ber05 sowie Bremsvermögen der K-Schalen-Ionisation nach Bot09. . . .	19
2.6	K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Materialdicke.	23
2.7	Optimale Zielmaterialdicke für Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur.	24
2.8	Maximale Effizienz der K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur.	25
2.9	K_α -Erzeugung in Titan in Abhängigkeit der Elektronentemperatur bei optimaler Zielmaterialdicke und konstanter Gesamtenergie der Elektronen. 26	
2.10	Optimale Elektronenenergie in Abhängigkeit der Ordnungszahl des Zielmaterials.	27
3.1	Schema des Lasersystems Centaurus X.	30
3.2	Bündelprofile vor und nach dem zweiten Multipassverstärker.	33
3.3	Schematische Darstellung der Röntgenerzeugung.	34
3.4	Einfluss der PTD auf die zeitliche Impulsform.	37
3.5	Das Bandlaufwerk.	38
3.6	Bilder der Vakuumkammer mit unterschiedlichem Debris-Schutz vor dem Eintrittsfenster.	40
3.7	Aufbau zur Messung des Röntgenspektrums.	44
3.8	Halbschattenmethode zur Bestimmung der Röntgenquellengröße.	48
3.9	Schattenwurf einer Kante bei der Bestimmung der Röntgenquellengröße. 48	
3.10	Ableitung des Helligkeitsprofils von Abbildung 3.9 mit angepasster Lorentzkurve.	49
3.11	Bestimmung des optimalen Rotationswinkels bei der Halbschattenmethode. 50	

4.1	Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit der p-polarisierten Komponente des Laserlichts.	51
4.2	Einfallswinkelabhängigkeit der Röntgenerzeugung.	53
4.3	Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit des Gitterabstands im Kompressor.	55
4.4	Impulsenergie der Röntgenstrahlung in Abhängigkeit der Linsenposition.	57
4.5	Schwankungen der Röntgenimpulsenergie mit laufendem und stehendem Plastikband vor dem Eintrittsfenster.	59
4.6	Bündelprofil eines aufgeweiteten Helium-Neon-Lasers nach Transmission durch ein bewegtes Plastikband zu verschiedenen Zeiten.	60
4.7	Abnahme der Röntgenimpulsenergie mit der Zeit mit Hohlkonus statt Plastik-Band als Debris-Schutz.	61
4.8	OCT-Messreihe der Bewegung der Kupferbands entlang seiner Oberflächennormalen während des Bandtransports.	63
4.9	Histogramm der OCT-Messreihe der Bewegung der Kupferbands entlang seiner Oberflächennormalen aus Abbildung 4.8.	64
4.10	Spektrum der Röntgenquelle.	65
4.11	Gradienten der Intensitätsverteilung der Röntgenquelle für verschiedene Linsenpositionen.	66
4.12	Größe der Röntgenquelle im Vergleich zur Röntgenimpulsenergie für verschiedene Linsenpositionen.	67
5.1	Schema des Aufbaus des Anrege-Abtast-Experiments für zeitaufgelöste Femtosekunden-Röntgenbeugung.	73
5.2	Strahlabschwächer im Anregearm	74
5.3	Strahlengang der Verzögerungsstrecke.	75
5.4	Strahlengang in einer Montel-Röntgenoptik.	76
5.5	Intensitätsverteilung der Röntgenstrahlung nach der Montel-Optik.	76
5.6	Nullpunktbestimmung mit Hilfe der Summenfrequenzerzeugung.	79
5.7	Summenfrequenzerzeugung aus Impulsen mit 800 nm und 400 nm Wellenlänge.	80
5.8	Typisches CCD-Bild bei HOPG-referenzierter Röntgenbeugung.	82
5.9	Typisches CCD-Bild bei Single-Bounce-referenzierter Röntgenbeugung.	84
5.10	Nach Aufnahmezeitpunkt sortierter Verlauf einer TRXRD-Messung an DIABN.	85
5.11	Nach Verzögerung sortierte korrigierte und unkorrigierte Daten der TRXRD-Messung an DIABN.	86
5.12	Strukturformel von DIABN	87
5.13	Erste TRXRD- und Röntgentransmissionsmessung an DIABN im (006)-Reflex.	88
5.14	TRXRD-Messung am DIABN-(006)-Reflex an optimierter Anlage.	89

5.15	Röntgentransmissionsmessung an DIABN senkrecht zur (001)-Ebene an optimierter Anlage.	90
5.16	Dehnung des GaAs senkrecht zur Oberfläche in Abhängigkeit der Tiefe und Zeit.	93
5.17	Überblick über die TRXRD-Mesungen an einkristallinem GaAs im (111)-Reflex mit 800 nm Anregungswellenlänge.	96
5.18	TRXRD-Messungen an GaAs bei 800 nm mit angepasster Exponentialfunktion	98
5.19	TRXRD-Mesungen an einkristallinem GaAs im (111)-Reflex mit 400 nm Anregungswellenlänge.	99
5.20	Skalierte TRXRD-Mesungen an einkristallinem GaAs im (111)-Reflex mit 400 nm Anregungswellenlänge.	100
A.1	Schaltplan der Steuerung des Bandlaufwerks	108

Tabellenverzeichnis

4.1	Parameter der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten lasergetriebenen Plasma-Röntgenquellen im Vergleich zu anderen Anlagen. (Tabelle modifiziert übernommen aus Tro10.)	69
5.1	Parameter der Röntgenoptik ELM31 von INCOATEC wie vom Hersteller angegeben.	77
5.2	Aus der Anpassung von $r(t)$ bzw. $r_0(t)$ resultierende zeitliche Nullpunkte	97
5.3	Ergebnisse der Anpassung von $r(t)$, $r_0(t)$ beziehungsweise $r_1(t)$ an die TXRD-Messungen an GaAs mit 400 nm Anregungswellenlänge.	100
A.1	Teileliste für die Steuerung des Bandlaufwerks	107

Literatur

- [Agr06] M. B. AGRANAT et al. *Generation of Characteristic X Rays by a Terawatt Femtosecond Chromium–Forsterite Laser*. JETP Letters 83(2) (März 2006), S. 72–74.
- [AIM06] Y. AKIMOTO, Y. INOUE und M. MINOWA. *Measurement of the thickness of an insensitive surface layer of a PIN photodiode*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 557(2) (Feb. 2006), S. 684–687.
- [Bar05] M. BARGHEER et al. *Comparison of focusing optics for femtosecond X-ray diffraction*. Applied Physics B: Lasers and Optics 80(6) (Jan. 2005), S. 715–719.
- [Bar06] M. BARGHEER, N. ZHAVORONKOV, M. WOERNER und T. ELSAESSER. *Recent Progress in Ultrafast X-ray Diffraction*. ChemPhysChem 7(4) (2006), S. 783–792.
- [Bea67] J. A. BEARDEN. *X-Ray Wavelengths*. Reviews of Modern Physics 39(1) (Jan. 1967), S. 78–124.
- [Bel97] A. R. BELL, J. R. DAVIES, S. GUERIN und H. RUHL. *Fast-electron transport in high-intensity short-pulse laser–solid experiments*. Plasma Physics and Controlled Fusion 39(5) (Mai 1997), S. 653.
- [Ber05] M. J. BERGER, J. S. COURSEY, M. A. ZUCKER und J. CHANG. *ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3)*. National Institute of Standards and Technology (2005).
- [Bet30] H. BETHE. *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie*. Annalen der Physik 397(3) (Jan. 1930), S. 325–400.
- [Bet32] H. BETHE. *Bremsformel für Elektronen relativistischer Geschwindigkeit*. Zeitschrift für Physik 76(5-6) (1932), S. 293–299.
- [BH34] H. BETHE und W. HEITLER. *On the Stopping of Fast Particles and on the Creation of Positive Electrons*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A 146(856) (Jan. 1934), S. 83–112.
- [BH96] B. BRILL und M. HEIBLUM. *Long-mean-free-path ballistic hot electrons in high-purity GaAs*. Physical Review B 54(24) (Dez. 1996), R17280–R17283.

- [Bla82] J. S. BLAKEMORE. *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*. Journal of Applied Physics 53(10) (Okt. 1982), S. 123–181.
- [Bor88] Z. BOR. *Distortion of Femtosecond Laser Pulses in Lenses and Lens Systems*. Journal of Modern Optics 35(12) (1988), S. 1907–1918.
- [Bor89] Z. BOR. *Distortion of femtosecond laser pulses in lenses*. Optics Letters 14(2) (Jan. 1989), S. 119–121.
- [Bot09] D. BOTE, F. SALVAT, A. JABLONSKI und C. J. POWELL. *Cross sections for ionization of K, L and M shells of atoms by impact of electrons and positrons with energies up to 1 GeV: Analytical formulas*. Atomic Data and Nuclear Data Tables 95(6) (Nov. 2009), S. 871–909.
- [Bra07] M. BRAUN et al. *Ultrafast Changes of Molecular Crystal Structure Induced by Dipole Solvation*. Physical Review Letters 98(24) (Juni 2007), S. 248301–248304.
- [Bra09] M. BRAUN et al. *Ultrafast X-ray experiments on structural changes in single crystals of polar molecules*. Applied Physics A: Materials Science & Processing 96(1) (Juli 2009), S. 107–115.
- [Bru87] F. BRUNEL. *Not-so-resonant, resonant absorption*. Physical Review Letters 59(1) (Juli 1987), S. 52–55.
- [BS02] S. BARMAN und G. P. SRIVASTAVA. *Lifetime of nonequilibrium zone-center longitudinal optical phonons in zinc-blende materials*. Applied Physics Letters 81(18) (Okt. 2002), S. 3395–3397.
- [BS04] S. BARMAN und G. P. SRIVASTAVA. *Long-wavelength nonequilibrium optical phonon dynamics in cubic and hexagonal semiconductors*. Physical Review B 69(23) (Juni 2004), S. 235208.
- [BS08] D. BOTE und F. SALVAT. *Calculations of inner-shell ionization by electron impact with the distorted-wave and plane-wave Born approximations*. Physical Review A 77(4) (Apr. 2008), S. 042701.
- [Cav01] A. CAVALLERI et al. *Ultrafast x-ray measurement of laser heating in semiconductors: Parameters determining the melting threshold*. Physical Review B 63(19) (Apr. 2001), S. 193306.
- [Che04] L. M. CHEN et al. *Study of hard x-ray emission from intense femtosecond Ti:sapphire laser - solid target interactions*. Physics of Plasmas 11(9) (2004), S. 4439–4445.
- [Che08] L. M. CHEN et al. *Study of x-ray emission enhancement via a high-contrast femtosecond laser interacting with a solid foil*. Physical Review Letters 100(4) (Jan. 2008), S. 045004.
- [Che96] G. CHERIAUX et al. *Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification*. Optics Letters 21(6) (März 1996), S. 414–416.

-
- [Cla12] R. CLADY et al. *Interplay between the hot phonon effect and intervalley scattering on the cooling rate of hot carriers in GaAs and InP*. Progress in Photovoltaics: Research and Applications 20(1) (2012), S. 82–92.
- [Coh00] S. M. COHEN. *Shell corrections for electrons*. Physical Review A 63(1) (Dez. 2000), S. 012901.
- [Cri13] G. CRISTOFORETTI et al. *Spatially resolved analysis of $K\alpha$ x-ray emission from plasmas induced by a femtosecond weakly relativistic laser pulse at various polarizations*. Physical Review E 87(2) (Feb. 2013), S. 023103.
- [Dav09] J. R. DAVIES. *Laser absorption by overdense plasmas in the relativistic regime*. Plasma Physics and Controlled Fusion 51(1) (Jan. 2009), S. 014006.
- [DR06] J.-C. DIELS und W. RUDOLPH. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena: Fundamentals, Techniques, and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, 2006.
- [Ede00] D. C. EDER, G. PRETZLER, E. FILL, K. EIDMANN und A. SAEMANN. *Spatial characteristics of $K\alpha$ radiation from weakly relativistic laser plasmas*. Applied Physics B: Lasers and Optics 70(2) (Feb. 2000), S. 211–217.
- [EK78] K. ESTABROOK und W. KRUER. *Properties of Resonantly Heated Electron Distributions*. Physical Review Letters 40(1) (1978), S. 42–45.
- [Emm10] P. EMMA et al. *First lasing and operation of an Ångström-wavelength free-electron laser*. Nature Photonics 4(9) (Sep. 2010), S. 641–647.
- [ESS02] F. EWALD, H. SCHWOERER und R. SAUERBREY. *$K\alpha$ -radiation from relativistic laser-produced plasmas*. Europhysics Letters 60(5) (Dez. 2002), S. 710–716.
- [FBT02] E. FILL, J. BAYERL und R. TOMMASINI. *A novel tape target for use with repetitively pulsed lasers*. Review of Scientific Instruments 73(5) (Mai 2002), S. 2190–2192.
- [Fra94] G. FRASER et al. *The X-ray energy response of silicon Part A. Theory*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 350(1–2) (Okt. 1994), S. 368–378.
- [Ful07] W. FULLAGAR et al. *A broadband laser plasma x-ray source for application in ultrafast chemical structure dynamics*. Review of Scientific Instruments 78(11) (2007), S. 115105.
- [Gah08] C. GAHL et al. *A femtosecond X-ray/optical cross-correlator*. Nature Photonics 2(3) (März 2008), S. 165–169.
- [GB92] P. GIBBON und A. R. BELL. *Collisionless absorption in sharp-edged plasmas*. Physical Review Letters 68(10) (März 1992), S. 1535–1539.

- [GF96] P. GIBBON und E. FÖRSTER. *Short-pulse laser-plasma interactions*. Plasma Physics and Controlled Fusion 38(6) (1996), S. 769–793.
- [Gib09] P. GIBBON et al. *Modelling and optimisation of fs laser-produced $K\alpha$ sources*. Applied Physics A 96(1) (Juli 2009), S. 23–31.
- [Gib90] H. M. GIBBS et al., Hrsg. *Nonlinear Photonics*. Bd. 30. Springer Series in Electronics and Photonics. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1990.
- [Glo10] T. E. GLOVER et al. *Controlling X-rays with light*. Nature Physics 6(1) (Jan. 2010), S. 69–74.
- [Gri99] D. J. GRIFFITHS. *Introduction to Electrodynamics*. 3rd ed. Upper Saddle River, N.J: Prentice Hall, 1999.
- [HGD93] B. HENKE, E. GULLIKSON und J. DAVIS. *X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at $E = 50\text{--}30000$ eV, $Z = 1\text{--}92$* . Atomic Data and Nuclear Data Tables 54(2) (Juli 1993), S. 181–342.
- [HMF02] K. HATANAKA, T. MIURA und H. FUKUMURA. *Ultrafast x-ray pulse generation by focusing femtosecond infrared laser pulses onto aqueous solutions of alkali metal chloride*. Applied Physics Letters 80(21) (2002), S. 3925.
- [Hou04] B. HOU et al. *Dependence of hard x-ray yield on laser pulse parameters in the wavelength-cubed regime*. Applied Physics Letters 84(13) (März 2004), S. 2259–2261.
- [Hou08] B. HOU, J. EASTER, A. MORDOVANAKIS, K. KRUSHELNICK und J. A. NEES. *Vacuum-free x-ray source based on ultrashort laser irradiation of solids*. Optics Express 16(22) (Okt. 2008), S. 17695–17705.
- [Hua91] D. HUANG et al. *Optical coherence tomography*. Science (New York, N.Y.) 254(5035) (Nov. 1991), S. 1178–1181.
- [KE85] W. L. KRUEER und K. ESTABROOK. *$J \times B$ heating by very intense laser light*. Physics of Fluids 28(1) (Jan. 1985), S. 430.
- [Kem92] M. KEMPE, U. STAMM, B. WILHELMI und W. RUDOLPH. *Spatial and temporal transformation of femtosecond laser pulses by lenses and lens systems*. Journal of the Optical Society of America B 9(7) (Juli 1992), S. 1158–1165.
- [Kha12] F. Y. KHATTAK et al. *Fast electron penetration in laser-irradiated solids*. The European Physical Journal D 66(11) (Nov. 2012), S. 1–7.
- [KO79] M. O. KRAUSE und J. H. OLIVER. *Natural widths of atomic K and L levels, $K\alpha$ X-ray lines and several KLL Auger lines*. Journal of Physical and Chemical Reference Data 8(2) (1979), S. 329.

- [Kor02] G. KORN et al. *Ultrashort 1-kHz laser plasma hard x-ray source*. Optics Letters 27(10) (Mai 2002), S. 866–868.
- [Kor07] C. von KORFF-SCHMISING et al. *Accurate time delay determination for femtosecond X-ray diffraction experiments*. Applied Physics B: Lasers and Optics 88(1) (2007), S. 1–4.
- [KR99] I. KOSTYUKOV und J.-M. RAX. *Ultra-high-Intensity Inverse-Bremsstrahlung Absorption*. Physical Review Letters 83(11) (Sep. 1999), S. 2206–2209.
- [Krä09] B. KRÄSSIG et al. *A simple cross-correlation technique between infrared and hard x-ray pulses*. Applied Physics Letters 94(17) (Apr. 2009), S. 171113.
- [Kru88] W. L. KRUEER. *The physics of laser plasma interactions*. Addison-Wesley, Jan. 1988.
- [Lan80] A. B. LANGDON. *Nonlinear Inverse Bremsstrahlung and Heated-Electron Distributions*. Physical Review Letters 44(9) (März 1980), S. 575–579.
- [Lee86] Y. LEE et al. *Room-Temperature Optical Nonlinearities in GaAs*. Physical Review Letters 57(19) (Nov. 1986), S. 2446–2449.
- [Leh79] R. F. LEHENY, J. SHAH, R. L. FORK, C. V. SHANK und A. MIGUS. *Dynamics of hot carrier cooling in photo-excited GaAs*. Solid State Communications 31(11) (Sep. 1979), S. 809–813.
- [Llo14] X. LLOVET, C. J. POWELL, F. SALVAT und A. JABLONSKI. *Cross Sections for Inner-Shell Ionization by Electron Impact*. Journal of Physical and Chemical Reference Data 43(1) (März 2014), S. 013102.
- [Lu09] W. LU et al. *Optimized $K\alpha$ x-ray flashes from femtosecond-laser-irradiated foils*. Physical Review E: Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics 80(2) (2009), S. 026404.
- [Lyo86] S. A. LYON. *Spectroscopy of hot carriers in semiconductors*. Journal of Luminescence 35(3) (Juni 1986), S. 121–154.
- [Mal65] I. H. MALTISON. *Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica*. Journal of the Optical Society of America 55(10) (Okt. 1965), S. 1205–1208.
- [MB10] P. MULSER und D. BAUER. *High Power Laser-Matter Interaction*. Springer, 2010.
- [MBR08] P. MULSER, D. BAUER und H. RUHL. *Collisionless Laser-Energy Conversion by Anharmonic Resonance*. Physical Review Letters 101(22) (Nov. 2008), S. 225002.
- [MGH00] M. MARTINELLI, L. GOMES und R. J. HOROWICZ. *Measurement of refractive nonlinearities in GaAs above bandgap energy*. Applied Optics 39(33) (Nov. 2000), S. 6193–6196.

- [MKF91] M. M. MURNANE, H. C. KAPTEYN und R. W. FALCONE. *Generation of efficient ultrafast laser-plasma x-ray sources*. Physics of Fluids B: Plasma Physics 3(8) (1991), S. 2409–2413.
- [MR11] G. MARGARITONDO und P. REBERNIK RIBIC. *A simplified description of X-ray free-electron lasers*. Journal of Synchrotron Radiation 18(2) (März 2011), S. 101–108.
- [Neu10] P. NEUMAYER et al. *The role of hot electron refluxing in laser-generated K-alpha sources*. Physics of Plasmas 17(10) (Okt. 2010), S. 103103.
- [Nib95] E. NIBBERING et al. *Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation*. Optics Communications 119(5–6) (Sep. 1995), S. 479–484.
- [Nib97] E. T. J. NIBBERING, G. GRILLON, M. A. FRANCO, B. S. PRADE und A. MYSYROWICZ. *Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N₂, and O₂ by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses*. Journal of the Optical Society of America B 14(3) (März 1997), S. 650–660.
- [Öff71] A. ÖFFNER. *Unit Power Imaging Catoptric Anastigmat*. (3,748,015). Juni 1971.
- [OR94] K. OSVAY und I. N. ROSS. *On a pulse compressor with gratings having arbitrary orientation*. Optics Communications 105(3–4) (Feb. 1994), S. 271–278.
- [Pal98] E. D. PALIK. *Handbook of optical constants of solids*. Bd. 3. Academic press, 1998.
- [Pas08] R. PASCHOTTA. *Encyclopedia of Laser Physics and Technology*. 1. Aufl. Page Version ID: 546122378. Berlin: Wiley-VCH, Okt. 2008.
- [Pis00] F. PISANI et al. *Experimental evidence of electric inhibition in fast electron penetration and of electric-field-limited fast electron transport in dense matter*. Physical Review E 62(5) (Nov. 2000), R5927–R5930.
- [Pre03] G. PRETZLER, F. BRANDL, J. STEIN, E. FILL und J. KUBA. *High-intensity regime of x-ray generation from relativistic laser plasmas*. Applied Physics Letters 82(21) (Mai 2003), S. 3623–3625.
- [Rei00] C. REICH, P. GIBBON, I. USCHMANN und E. FORSTER. *Yield optimization and time structure of femtosecond laser plasma K α sources*. Physical Review Letters 84(21) (2000), S. 4846–4849.
- [Rei07] C. REICH et al. *Ultrafast x-ray pulses emitted from a liquid mercury laser target*. Optics Letters 32(4) (Feb. 2007), S. 427–429.

-
- [Ril05] D. RILEY et al. *K α yields from Ti foils irradiated with ultrashort laser pulses*. Physical Review E: Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics 71(1) (Jan. 2005), S. 016406.
- [Roh11] A. ROHATGI. *WebPlotDigitizer*. 2011.
- [Roo09] C. ROOT et al. *Excitation wavelength dependent pump-probe signatures of molecular crystals*. Applied Physics A: Materials Science & Processing 96(1) (Juli 2009), S. 99–106.
- [Ros08] M. ROSETE-AGUILAR, F. C. ESTRADA-SILVA, N. C. BRUCE, C. J. ROMÁN-MORENO und R. ORTEGA-MARTÍNEZ. *Calculation of temporal spreading of ultrashort pulses propagating through optical glasses*. Revista mexicana de física 54(2) (2008), S. 141–148.
- [Ros99] C. ROSE-PETRUCK et al. *Picosecond-milliångstrom lattice dynamics measured by ultrafast X-ray diffraction*. Nature 398(6725) (März 1999), S. 310–312.
- [Sal02] D. SALZMANN, C. REICH, I. USCHMANN, E. FÖRSTER und P. GIBBON. *Theory of K α generation by femtosecond laser-produced hot electrons in thin foils*. Physical Review E 65(3) (Feb. 2002), S. 036402.
- [SB85] S. M. SELTZER und M. J. BERGER. *Bremsstrahlung spectra from electron interactions with screened atomic nuclei and orbital electrons*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 12(1) (Aug. 1985), S. 95–134.
- [Sch00] R. W. SCHOENLEIN et al. *Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation*. Science 287(5461) (März 2000), S. 2237–2240.
- [Sha87] J. SHAH et al. *Determination of intervalley scattering rates in GaAs by subpicosecond luminescence spectroscopy*. Physical Review Letters 59(19) (Nov. 1987), S. 2222–2225.
- [Sig06] P. SIGMUND. *Particle Penetration and Radiation Effects*. Springer Series in Solid-State Sciences (151). Springer Berlin Heidelberg, Jan. 2006.
- [SM85] D. STRICKLAND und G. MOUROU. *Compression of amplified chirped optical pulses*. Optics Communications 56(3) (Dez. 1985), S. 219–221.
- [Sok03] K. SOKOLOWSKI-TINTEN et al. *Femtosecond x-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit*. Nature 422(6929) (März 2003), S. 287–289.
- [SSB82] R. M. STERNHEIMER, S. M. SELTZER und M. J. BERGER. *Density effect for the ionization loss of charged particles in various substances*. Physical Review B 26(11) (Dez. 1982), S. 6067–6076.
- [Str11] U. STROTH. *Plasmaphysik*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2011.

- [SWC12] J. C. H. SPENCE, U. WEIERSTALL und H. N. CHAPMAN. *X-ray lasers for structural and dynamic biology*. Reports on Progress in Physics 75(10) (Okt. 2012), S. 102601.
- [SWZ97] M. SEEL, E. WILDERMUTH und W. ZINTH. *A multichannel detection system for application in ultra-fast spectroscopy*. Measurement Science and Technology 8(4) (1997), S. 449–452.
- [Tak69] S. TAKAGI. *A Dynamical Theory of Diffraction for a Distorted Crystal*. Journal of the Physical Society of Japan 26(5) (Mai 1969), S. 1239–1253.
- [Tho09] A. C. THOMPSON et al. *X-Ray Data Booklet*. Hrsg. von A. C. THOMPSON. 3. Aufl. Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, 2009.
- [Tho86] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS und J. TAUC. *Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses*. Physical Review B 34(6) (Sep. 1986), S. 4129–4138.
- [Tro10] F. TROMMER. *Aufbau und Testexperimente an einer Femtosekunden-Röntgen-Quelle*. Diplomarbeit: Ludwig-Maximilians-Universität München (März 2010).
- [Uch06] H. UCHIDA, K. HASUIKE, K. TORII und H. TSUNEMI. *Quantitative method of measuring spot size of microfocus x-ray generator*. Japanese Journal of Applied Physics 45(6 A) (2006), S. 5277–5279.
- [Ums03] D. UMSTADTER. *Relativistic laser plasma interactions*. Journal of Physics D: Applied Physics 36(8) (Apr. 2003), R151–R165.
- [War90] B. E. WARREN. *X-ray diffraction*. 2. Aufl. New York: Dover Publications, 1990.
- [WC53] J. D. WATSON und F. H. CRICK. *Molecular structure of nucleic acids; a structure for deoxyribose nucleic acid*. Nature 171(4356) (Apr. 1953), S. 737–738.
- [WK97] S. C. WILKS und W. KRUER. *Absorption of ultrashort, ultra-intense laser light by solids and overdense plasmas*. IEEE Journal of Quantum Electronics 33(11) (1997), S. 1954–1968.
- [Woe] M. WOERNER. *Private Mitteilung*.
- [Wyc63] R. W. G. WYCKOFF. *Crystal structures 1*. 2. Aufl. New York: Interscience Publishers, 1963.
- [XL99] Z. XIE und S. A. LYON. *Ballistic transport in p-type GaAs*. Applied Physics Letters 75(14) (Okt. 1999), S. 2085–2087.
- [Zha04] N. ZHAVORONKOV, Y. GRITSAI, G. KORN und T. ELSAESSER. *Ultra-short efficient laser-driven hard x-ray source operated at a kHz repetition rate*. Applied Physics B: Lasers and Optics 79(6) (Okt. 2004), S. 663–667.

- [Zha05] N. ZHAVORONKOV et al. *Microfocus Cu K α source for femtosecond x-ray science*. Optics Letters 30(13) (Juli 2005), S. 1737–1739.
- [Zol01] S. ZOLLNER. *Optical constants and critical-point parameters of GaAs from 0.73 to 6.60 eV*. Journal of Applied Physics 90(1) (Juli 2001), S. 515–517.
- [ZZ11] W. ZINTH und U. ZINTH. *Optik: Lichtstrahlen – Wellen – Photonen*. 3. Aufl. München: Oldenbourg, 2011.
- [ZZ96] A. ZHOLENTS und M. ZOLOTOREV. *Femtosecond X-Ray Pulses of Synchrotron Radiation*. Physical Review Letters 76(6) (Feb. 1996), S. 912–915.

Danksagung

Mein Dank gilt allen, die zum Gelingen meiner Doktorarbeit direkt und indirekt beigetragen haben. Insbesondere möchte ich mich bedanken bei:

Prof. Dr. Wolfgang Zinth dafür, dass er mir diese Arbeit ermöglicht hat, dass er immer ein offenes Ohr für mich wie für alle seine Doktoranden hat und für seine Unterstützung, derer ich mir immer sicher sein konnte.

Dr. Markus Braun für seine vielen Ideen und seinen immer kompetenten Rat, gerade in der Anfangsphase des Projekts sowie für die Übernahme der Zweitkorrektur und der damit verbundenen Arbeit.

Florian Lederer, Florian Trommer und Stefan Hofmann, den ritterlichen Röntgenrecken, für so manche gemeinsam geschlagene Laborschlacht, die unzählbaren Diskussionen, das Korrekturlesen und für ihre Freundschaft.

Rudolf Schwarz, Alfons Stork, Christian Hausmann und Harald Hoppe, dem Werkstatt-Team am BMO, für die vielen Arbeiten das Röntgenprojekt betreffend, für ihre Hilfe bei verschiedensten technischen Belangen und ihre immer inhaltlich kompetenten und herzlich ausgedrückten Ratschläge.

Alexandra Michaelis und Marianne Widmann aus dem Sekretariat für ihre Hilfe bei den verschiedensten Problemen.

Dr. Karl-Heinz Mantel und Florian Trommer, dem IT-Team, ohne die ich wahrscheinlich mit Millimeterpapier und Schreibmaschine hätte arbeiten müssen.

Dem gesamten Lehrstuhl für die tolle kollegiale und konstruktive Arbeitsatmosphäre.

Benedikt Bäumler für Druck, Bindung und äußere Gestaltung der Doktorarbeit.

Meiner Familie und meinen Freunden für ihre Unterstützung und den Ausgleich zur Doktorarbeit, den ich durch sie hatte.

Meiner Frau Eva-Maria, die immer für mich da ist und mir stets Rückhalt gibt, auch wenn es mal nicht so läuft wie geplant. Danke, Eva-Maria, für Deine Liebe und Deine Geduld.

Meiner Tochter Elisa für die Freude, die sie mir jeden Tag bereitet.